

Nahfeldmikroskopische Untersuchungen laserinduzierter DFB-Strukturen

D i s s e r t a t i o n
zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften

vorgelegt von
Dirk Scheel
aus Pinneberg

genehmigt von der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Technischen Universität Clausthal

Tag der mündlichen Prüfung
7.7.2003

Vorsitzender der Prüfungskommission.....Prof. Dr. D. Mayer

Hauptberichterstatter Prof. Dr. W. Schade

Berichterstatter Prof. Dr. D. Kip

Die vorliegende Arbeit wurde im Zeitraum von September 1998 bis Juni 2003 am Institut für Physik und Physikalische Technologien der Technischen Universität Clausthal angefertigt.

”Mikroskope und Fernröhre verwirren eigentlich den reinen Menschensinn.”

(J. W. von Goethe)

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Das optische Nahfeldmikroskop	7
2.1	Optisches Auflösungsvermögen nichttrasternder Lichtmikroskope	7
2.2	Optische Auflösung unterhalb des Beugungslimits	9
2.3	Apparative Varianten	10
2.3.1	Detektionsmechanismen	11
2.3.2	Sondenpositionierung	11
2.4	Sondenpräparation	12
2.4.1	Ziehen von Faserspitzen	15
2.4.2	Beschichtung von Faserspitzen	19
2.5	Aufbau des optischen Nahfeldmikroskops	21
2.6	Abstandsregelung	25
2.6.1	Rasterfrequenz	32
2.6.2	PID-Regelung	34
2.6.3	Interferometrische Piezokalibrierung	36
2.7	Topographische Auflösung	40
2.8	Optische Auflösung	43
3	Ortsaufgelöste Detektion transienter lichtinduzierter Gitter	47
3.1	Interferenz	47
3.1.1	Theoretisches Modell	48

3.1.1.1	Räumliches Verhalten	50
3.1.1.2	Zeitliches Verhalten	51
3.2	Lichtinduzierte Gitter	52
3.2.1	Populationsdichtegitter	53
3.2.2	Beugungseffizienz	53
3.2.2.1	Reflexionsgitter	53
3.2.2.2	Selbstbeugung	54
3.2.3	Transiente Gitter in Farbstofflasersystemen	54
3.3	Evaneszenzfeld	55
3.3.1	Theoretisches Modell	55
3.4	Bestimmung des optischen Auflösungsvermögens des Nahfeldmikroskops . .	61
3.4.1	Messung des Interferenzstreifenabstandes	63
3.4.2	Messung der Eindringtiefe des evaneszenten Feldes	67
3.4.3	Vergleich der Ergebnisse mit theoretischen Modellen	68
4	Optisch gepumpte Laser mit verteilter Rückkopplung (DFB-Laser)	69
4.1	Laserfarbstoff Rhodamin 6G	70
4.1.1	Trägermaterialien für Laserfarbstoffe	74
4.1.1.1	Sol-Gel	75
4.1.1.2	Polymethylmethacrylat	76
4.2	Ratengleichungsmodell	77
5	Microchiplaser gepumpter DFB-Prismen-Laser	81
5.1	Theoretisches Modell	81
5.2	Spektroskopische Diagnostik	88
5.2.1	Monochromatoren	88
5.2.2	Streakkamera	91
5.3	Experimenteller Aufbau	92
5.3.1	Microchiplaser und akusto-optischer Modulator	96

5.3.2	Präparation der DFB-Prismen	98
6	Messungen an Rhodamin 6G-dotierten Sol-Gel-Schichten	101
6.1	Stabilität	101
6.2	Nahfeldmikroskopische Untersuchungen	102
6.2.1	Absorptionsverhalten	102
6.2.2	Fluoreszenzverhalten	102
6.3	Diskussion	104
7	Messungen an Rhodamin 6G-dotierten PMMA-Schichten	105
7.1	Absorptionsverhalten	105
7.2	Spektrale Charakterisierung	109
7.3	Zeitliche Charakterisierung	111
7.4	Stabilität	114
7.5	Nahfeldmikroskopische Untersuchungen	120
7.5.1	Absorptionsverhalten	120
7.5.2	Fluoreszenzverhalten	122
7.6	Nahfeldmikroskopische Untersuchungen im Laserbetrieb	125
7.6.1	Messung des Kontrastverhältnisses	126
7.6.2	Messung der Eindringtiefe	134
7.7	Diskussion	138
7.7.1	Vergleich mit theoretischem Modell	139
7.7.2	Mathematische Modellierung	144
7.7.3	Interpretation des spektralen Verhaltens	149
7.7.4	Entwicklung eines Modells	150
8	Zusammenfassung und Ausblick	153
9	Anhang	157
9.1	Kramers-Krönig-Relationen	157

Literaturverzeichnis	161
Danksagung	177
Eidesstattliche Erklärung	178

1 Einleitung

Mit Beginn des 21. Jahrhunderts kristallisiert sich zunehmend die optische Technologie als Schlüsseltechnologie für die Entwicklung neuartiger, oftmals miniaturisierter, optischer Verfahren und Bauelemente heraus. So finden miniaturisierte Strahlquellen und integrierte Optiken im Bereich der Informationstechnologien, zum Datentransfer und zur Datensicherung vielfältigen Einsatz: Die Erweiterung des physikalischen Parameterraums durch Anwendung holographischer Verfahren und spektraler Selektion ermöglicht beispielsweise die Speicherdichte einer Compact Disc zu erweitern [1]. Auch eine direkte optische Adressierung unterhalb des Beugungslimits ist seit der Entwicklung des optischen Nahfeldmikroskops durch D. W. Pohl et al. [2] denkbar. In der Prozess- und Umweltanalytik und auch im kritischen Bereich der Medizintechnik finden optische Sensoren als Bio- und Chemosensoren zunehmend ihre Berechtigung neben konventionellen Verfahren und ersetzen diese häufig. Der große Vorteil gegenüber konventionellen Verfahren liegt u.a. in dem Fehlen elektrischer Kontakte und der Unempfindlichkeit gegen elektrische Felder, wodurch ein Einsatz sogar in explosionsgeschützten Bereichen möglich wird. Zudem ermöglichen optische Sensoren durch die hohe Messgenauigkeit zunehmend die online und insitu Detektion kleinster Probenmengen, ohne deren vorherige Aufbereitung.

Unterschiedlichste optische Anwendungen nutzen das breite Spektrum derzeit zur Verfügung stehender Dauerstrich (cw, engl.: **continous wave**)- und PulsLasersysteme. Zur Anwendung optischer Strahlquellen in der Sensorik und Spektroskopie werden insbesondere an die Pulslänge, die spektrale Breite und das Durchstimmverhalten des emittierten Lichts hohe Anforderungen gestellt: So spielt bei der zeitaufgelösten Spektroskopie die Pulsbreite Δt des emittierten Laserpulses eine wichtige Rolle, da diese kleiner als die Zeitkonstante des zu untersuchenden Prozesses sein muss. Um jedoch eine spektrale Selektivität sicher zu stellen, sollte gleichzeitig die spektrale Breite $\Delta \lambda$ des Pulses klein sein. Da die Pulsbreite Δt und die spektrale Breite $\Delta \lambda$ über eine Fouriertransformation verknüpft sind, können beide nicht gleichzeitig beliebig verkleinert werden. Dies wird z.B. beim Vergleich eines HeNe-cw-Lasersystems mit einer spektralen Breite von $\Delta \lambda < 0,01$ nm und einem Femtosekundenlaser mit einer Pulsbreite $\Delta t \approx 100$ fs und einer spektralen Breite $\Delta \lambda \approx 10$ nm deutlich. Ziel bei der Entwicklung neuer und der Optimierung bestehender Lasersysteme ist daher die Realisierung fourier-limitierter Pulse, welche den besten Kompromiss zwischen den beiden Anforderungen darstellt.

Zusätzlich zu der Erzeugung fourier-limitierter Laserpulse stellt das Durchstimmverhalten der Emissionswellenlänge des Lasers über einen großen spektralen Bereich eine weitere wichtige Bedingung für die Anwendung des Lasers in der Spektroskopie dar. Diese Eigenschaften konnten z.B. von Shank et al. 1971 [3] durch die Entwicklung eines Farbstofflasers mit verteilter Rückkopplung (DFB-Laser, engl.: **D**istributed-**F**eed**B**ack-Laser) vereint werden.

Um derartige Laserquellen auch außerhalb des Labors und ohne die Betreuung durch eine speziell ausgebildete Fachkraft zu nutzen, besteht der Wunsch, diese Laserquellen zu miniaturisieren und für einen mobilen Einsatz zu konfigurieren, wobei ein nahezu wartungsfreier Betrieb ohne aufwändige Wartungsarbeiten, z.B. das Wechseln giftiger Farbstofflösungen, angestrebt wird. Ein Ansatz zur Miniaturisierung stellt die Verwendung laserfarbstoffdotierter Festkörper dar, welche in gleicher oder ähnlicher Geometrie wie das System von Shank et al. [3] optisch gepumpt werden. Durch die Wahl geeigneter Festkörper, z.B. flexible Polymere, kann die Form des resultierenden laseraktiven Mediums der Anwendung nahezu beliebig angepasst werden. So ermöglicht beispielsweise die Beschichtung eines Prismas mit einem laserfarbstoffdotierten Polymer eine effiziente, leicht justierbare Pumpgeometrie bei gleichzeitiger Reduzierung der Anzahl der benötigten optischen Komponenten [4]. Durch die Wahl einer ebenfalls miniaturisierten Laserpumpquelle konnte so eine moderne miniaturisierte durchstimmbare Laserlichtquelle zur Verfügung gestellt werden, welche ein breites Anwendungsfeld im Bereich der Spektroskopie, der optischen Faserkommunikation und der Realisierung optischer Computer erschließt.

Als mögliche Trägermaterialien des Laserfarbstoffes werden vielfach Polymere und Sol-Gel-Schichten diskutiert und untersucht, in welche eine permanente oder transiente DFB-Struktur induziert wird: H. Kogelnik und C. V. Shank zeigten 1971 erstmals die DFB-Laseremission an Rhodamin 6G-dotierten Gelatinefilmen, in welche zuvor mit Hilfe von UV-Licht eine Brechungsindexmodulation permanent induziert wurde [5]. Seit dieser Entwicklung konnten durch die Dotierung von Polymer- [6] und Sol-Gel-Schichten [7] Wellenlängen vom Ultravioletten bis zum nah-infraroten Spektralbereich erzeugt werden. Auch eine Kombination verschiedener Farbstoffe innerhalb eines Trägermaterials ist möglich: S.-S. Yap et al. zeigten im Jahr 2002 [8] erstmals durch die Kombination der Laserfarbstoffe Coumarin 460, Disodium Fluorescein und Cresyl Violet in einem PVA-Film die Möglichkeit einer Rot-Grün-Blau (RGB) Strahlungsquelle auf. Zur gleichzeitigen Emission von mehreren Wellenlängen nutzten Y. Oki et al. im selben Jahr [9] eine Rhodamin 6G-dotierte PMMA(=Polymethylmethacrylat)-Schicht, in welche sie mehrere parallele Wellenleiterstrukturen ätzten. Diese Wellenleiter wurden mit jeweils einer eigenen DFB-Struktur versehen. Diesen miniaturisierten DFB-Laser-Chip setzten Y. Oki et al. bei diskreten, nicht scannenden Absorptionsmessungen an einer Natriumdampfzelle ein.

Während das optische Ausbleichen (engl.: photobleaching) der Farbstofflösung in dem von Shank et al. [3] eingesetzten Farbstofflaser durch die Verwendung eines ausreichend großen Lösungsvolumens, das Umpumpen und durch regelmäßigen Austausch der Lösung keine Rolle spielt, werden viele der diskutierten Festkörper-Farbstoffsysteme und ihre Anwendung durch das optische Ausbleichen des Farbstoffes im Trägermaterial behindert. So erlischt beispielsweise die von S.-S. Yap et al. vorgestellte RGB-Quelle bereits nach ca. 40 Pumpimpulsen [8]. Gleichzeitig werden durch das optische Ausbleichen aber auch verschiedene Anwendungen im Bereich der optischen Faserkommunikation ermöglicht; so können beispielsweise durch fest induzierte Strukturen optische Y-Verbinde, Gitter und Linsen und natürlich auch Wellenleiter selbst in dem Festkörper induziert werden. Ein Beispiel für den Einsatz von permanenten optischen Gittern in optischen Wellenleiterstruk-

turen stellt beispielsweise die Verwendung als Reflexionsfilter dar [10]. Derartige optische Gitter können aber auch zur Detektion elektrischer Felder bzw. durch Anlegen elektrischer Felder als optische Schalter eingesetzt werden [11]. Die Untersuchung des optischen Ausbleichens von Farbstoffen in Lösungen und in Festkörpern ist Bestandteil der aktuellen Forschung [12–16].

Die Untersuchung der induzierten transienten DFB-Struktur in dem von Shank et al. [3] vorgestellten Farbstofflaseraufbau ist aufgrund der beschränkten Auflösung mit Lichtmikroskopen nicht möglich und der Aufbau lässt rein geometrisch keine Verwendung rasternder Sondenmikroskopieverfahren zu.

Im Rahmen dieser Arbeit wird erstmals eine transiente DFB-Struktur in einer geeigneten laserfarbstoffdotierten Festkörperschicht mit einem rasternden optischen Nahfeldmikroskop (NSOM, engl.: **N**earfield-**S**canning-**O**ptical-**M**icroscope) untersucht. Dabei ermöglichen die durchgeführten Untersuchungen der Struktur im DFB-Laserbetrieb erstmalig die Detektion des verantwortlichen Rückkopplungsmechanismus des DFB-Lasers.

Die rasternde optische Nahfeldmikroskopie ermöglicht seit ihrer Umsetzung Anfang der 90er Jahre [2] eine gleichzeitige optische und topographische Materialcharakterisierung mit einer lateralen Auflösung Δx unterhalb des Beugungslimits. Dabei werden Auflösungen bis zu $\Delta x < 30$ nm erreicht: Im März des Jahres 2003 präsentierten A. Hartschuh et al. nahfeldmikroskopische Aufnahmen an Carbon-Nanoröhrchen, welche eine optische Auflösung unterhalb von 30 nm aufwiesen [17]. Es wird eine Apertur, deren Durchmesser d kleiner als die Wellenlänge λ des eingestrahltten Lichtes ist, in einem Abstand $a \ll \lambda$ rasternd über die Probe geführt. Die Detektion einer optischen Information basiert auf der Existenz eines evaneszenten Feldes im Bereich der Apertur, die derart dicht an die zu untersuchende Probe herangeführt wird, dass eine Wechselwirkung des Feldes mit der Probenoberfläche stattfindet.

Neben „klassischen“ mikroskopischen Untersuchungsmöglichkeiten ergeben sich mit der nun erhöhten Auflösung vielfältige Einsatzmöglichkeiten des NSOMs, beispielsweise

- die Detektion von magneto-optischen Effekten ohne das Anlegen externer Magnetfelder [18],
- die lokale Auflösung von Prozessen höherer Ordnung und der Molekülorientierung mit Hilfe der polarisationssensitiven Nahfeldmikroskopie [19],
- die Bestimmung von Dotierungskonzentrationen an pn-Übergängen durch die ortsauflöste Messung des lichtinduzierten Photostroms [20],
- die lokale Detektion inhomogener Dotierungskonzentrationen und der daraus resultierenden nichtlinearen Effekte [21, 22],
- die Materialbearbeitung auf der Skala von Nanometern [23].

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein modulares optisches Nahfeldmikroskop entwickelt und aufgebaut, welches über die Nahfeldsonde sowohl eine Beleuchtung des Materials als auch eine Photonendetektion ermöglicht und somit vielfältige orts aufgelöste spektroskopische Untersuchungsmethoden bereitstellt. Ein generelles Problem des optischen Nahfeldmikroskops ist das Auftreten von Artefakten im optischen Signal, die häufig aus der Topographie der Probe resultieren. Daher wurde besonderer Wert auf die Güte der Abstandsregelung gelegt, um bei der Rasterung einen konstanten Abstand der Sonde von der Probe zu gewährleisten und somit das Auftreten derartiger Artefakte auszuschließen. Durch die Abstandsregelung, welche auch zum Schutz der Sonde dient, kann die Geschwindigkeit, mit der die Probenoberfläche gerastert wird, relativ klein werden. Durch geeignete Algorithmen und Komponenten wird eine ausreichend schnelle Messung ermöglicht. Als Sonden werden mit Hilfe eines modifizierten Pipettenpullers gezogene Glasfaserspitzen eingesetzt, welche zur Bildung einer Apertur ($d \ll \lambda$) mit Aluminium in einer Rotationsbeschichtungskammer bedampft werden.

Das realisierte optische Nahfeldmikroskop wird zur Charakterisierung der optischen Eigenschaften von Chip-Laserlichtquellen, die nach dem Prinzip der verteilten Rückkopplung arbeiten, eingesetzt. Der laseraktive Farbstoff Rhodamin 6G wird dazu in Sol-Gel oder Polymethylmethacrylat unterschiedlicher Kettenlänge physikalisch gelöst und zur Durchlichtcharakterisierung auf Substratplättchen oder für den Einsatz als Laserlichtquelle auf eine Kathetenfläche eines 90°-Glasprismas aufgeschleudert. Über die Grundfläche des Prismas wird die laseraktive Schicht unter geeignetem Winkel optisch unter Verwendung eines passiv-gütegeschalteten $\text{Cr}^{4+}:\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ -Microchip-Lasers gepumpt. Dadurch wird eine transiente Gitterstruktur und somit sowohl eine Brechungs- als auch eine Absorptionsindexmodulation in die dotierte PMMA-Schicht induziert und die für die Lasertätigkeit notwendige Rückkopplung erzeugt. Der Einfluss verschiedener Trägermaterialien, unterschiedlicher Polymerkettenlängen und Farbstoffkonzentrationen auf die Laserlebensdauern der aktiven Schicht wird gemessen und diskutiert.

Zur lokalen Bestimmung des Rückkopplungsmechanismus wird der DFB-Laser derart in das optische Nahfeldmikroskop integriert, dass eine Untersuchung der aktiven Schicht im Laserbetrieb möglich ist. Mit Hilfe der Nahfeldsonde wird das evaneszente Feld der DFB-Struktur, dessen Periodizität die Wellenlänge des Pumplichtes deutlich unterschreitet, im Laserbetrieb und unterhalb der Laserschwelle im Photonendetektionsmodus vermessen. Die Messungen werden mit Simulationsrechnungen zum Ratengleichungsmodell des DFB-Lasers verglichen und der Einfluss des erstmals direkt gemessenen Kontrastverhältnisses diskutiert.

Eine weitere Betriebsart des optischen Nahfeldmikroskops ermöglicht die Bestimmung der Eindringtiefe des evaneszenten Feldes. Rechnungen zeigen, dass diese in der vorgestellten Prismenkonfiguration unabhängig vom Brechungsindex der aufgetragenen homogenen Schicht ist. Es werden jedoch örtliche Unterschiede in der Eindringtiefe während des Laserbetriebs gemessen. Diese Ergebnisse werden anhand eines Modells, dass die periodische Modulation des Brechungsindex berücksichtigt, diskutiert.

Aufgrund des Ausbleichens des Farbstoffes und der damit verknüpften begrenzten Betriebsdauer des Lasers ist der Einsatz neuer optischer Materialien mit längeren Lebensdauern erwünscht. Materialien, die sich möglicherweise für den Einsatz in DFB-Lasern eignen, werden vorgestellt.

Es wird gezeigt, dass das im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute rasternde optische Nahfeldmikroskop aufgrund der Güte der Abstandsregelung und der Bereitstellung unterschiedlichster Betriebsmodi ein großes Potenzial hat, optische Materialien, die ihren Einsatz in miniaturisierten Laserlichtquellen finden sollen, zu charakterisieren.

2 Das optische Nahfeldmikroskop

2.1 Optisches Auflösungsvermögen nichttrasternder Lichtmikroskope

Die Auflösung konventioneller optischer Mikroskope ist durch Beugungseffekte auf ungefähr die Hälfte der Wellenlänge der verwendeten Strahlung begrenzt.

Das Bild einer Punktlichtquelle (der Abstand a zwischen Punktlichtquelle und abbildendem Objektiv sei groß im Vergleich zur Wellenlänge λ) wird im Fall kohärenter Beleuchtung durch Fraunhofer-Beugung beschrieben. Die Intensitätsverteilung $I(\theta, \lambda, R)$ in Abhängigkeit vom Richtungswinkel θ , von der Wellenlänge λ und vom Radius R der beugungsbegrenzenden Blende lautet [24]:

$$I(\theta, \lambda, R) = I_0 \left\{ \frac{J_1 \left(\frac{2\pi}{\lambda} R \sin \theta \right)^2}{\frac{2\pi}{\lambda} R \sin \theta} \right\}^2. \quad (2.1)$$

$J_1(x)$ bezeichnet die Besselfunktion erster Ordnung. Die Beugung 0.-ter Ordnung (zentraler Fleck oder auch Airy-Scheibe mit Radius r) ist bis zur ersten Nullstelle der Besselfunktion ausgedehnt. Für den Sinus des zugehörigen Richtungswinkels θ_1 gilt [25]:

$$\sin \theta_1 = 0,61 \frac{\lambda}{R} \quad \text{mit } \theta_1 \ll 1 \text{ folgt :} \quad (2.2)$$

$$\theta_1 \approx 0,61 \frac{\lambda}{R}. \quad (2.3)$$

Das Rayleigh-Kriterium wiederum besagt, dass zwei benachbarte Objekte A und B gerade dann noch als getrennt wahrgenommen werden können, wenn das zentrale Maximum des Beugungsbildes von Objekt A mit dem ersten Minimum des Beugungsbildes von Objekt B zusammenfällt. Das heißt, wenn der Abstand der Maxima gerade dem Radius r der Airy-Scheiben entspricht bzw. wenn für den Richtungswinkel θ_{\min} Gleichung 2.3 mit $\theta_{\min} > \theta_1$ erfüllt ist. Für den Abstand r ergibt sich bei einer Abbildung mit einer auf das Objekt fokussierten Linse (Brennweite $f \approx a$):

$$r = 0,61 \frac{a\lambda}{R} \approx 0,61 \frac{f\lambda}{R}. \quad (2.4)$$

Bei dem Rayleigh-Kriterium bildet sich somit ein lokales Intensitätsminimum zwischen den beiden Hauptmaxima (Abbildung 2.1a). Eine Trennung ist allerdings nur gewährleistet, wenn das von den Objekten A und B kommende Licht inkohärent ist (Abbildung 2.1c). Somit ist das Rayleigh-Kriterium nur auf selbstleuchtende oder inkohärent beleuchtete Objekte (z.B. Sterne, fluoreszierende Körper) anwendbar.

Das Auflösungskriterium von C. Sparrow geht noch einen Schritt weiter: Wird der Abstand weiter verringert, verschwindet das lokale Minimum und es entsteht ein lokales Plateau (Abbildung 2.1b und 2.1d).

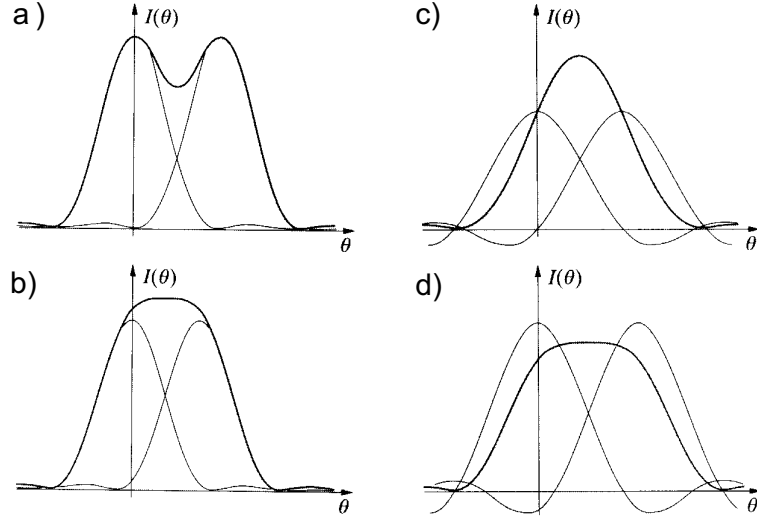


Abbildung 2.1: Die Abbildungen zeigen die Überlagerung der Bilder zweier beleuchteter Lochblenden. Die dünnen Linien stellen die Einzelintensitäten dar, die stark ausgezogene ihre Summe: a) inkohärente Beleuchtung, Rayleigh-Kriterium, b) inkohärente Beleuchtung, Sparrow-Kriterium c) kohärente Beleuchtung, Rayleigh-Kriterium und d) kohärente Beleuchtung, Sparrow-Kriterium. Bei kohärenter Beleuchtung löst das Rayleigh-Kriterium die Objekte nicht mehr auf. Die Abbildungen sind [26] entnommen.

Nach dem Sparrow-Kriterium werden zwei Punkte gleicher Intensität als aufgelöst betrachtet, wenn ein minimaler Winkel θ_{\min} zwischen den beiden Punkten nicht unterschritten wird, für den gilt:

$$\left(\frac{d^2 I(\theta, \lambda, R)}{d\theta^2} \right)_{\theta=\theta_{\min}/2} = 0. \quad (2.5)$$

Daraus folgt nach Differenzierung der Besselfunktion das Sparrow-Kriterium für inkohärente Strahlung [26]:

$$\theta_{\min} = 0,475 \frac{\lambda}{R}. \quad (2.6)$$

Das Sparrow-Kriterium behält bei kohärenter Strahlung seine Gültigkeit (Abbildung 2.1b und 2.1d): der im Rayleigh-Kriterium (Gleichung 2.3 bzw. 2.4) vernachlässigte Interferenzterm (siehe Abschnitt 3.1.1, Gleichung 3.5) wird hier, aufgrund seiner direkten Abhängigkeit von der Intensitätsverteilung $I(\theta, \lambda, R)$ (Gleichung 2.1), mit berücksichtigt und für das Sparrow-Kriterium bei kohärenter Strahlung [26]¹:

$$\theta_{\min} = 0,73 \frac{\lambda}{R}. \quad (2.7)$$

¹Es liegt nahe zur Erhöhung des Auflösungsvermögens stets eine inkohärente Beleuchtung zu wählen. Dies ist für den Fall einer festen Phasenbeziehung von π zwischen den beiden Objekten nicht der Fall: hier liegt für beliebige Abstände zwischen den beiden Intensitätsmaxima stets ein Minimum zwischen ihnen.

Bis jetzt wurde der Brechungsindex n des Mediums zwischen der Optik und dem untersuchten Objekt mit $n = 1$ vorausgesetzt. Durch den Einsatz zusätzlicher Medien (Immersionsöle) mit höherem Brechungsindex n und einer Verkleinerung der Wellenlänge λ des eingesetzten Lichts kann die Auflösung weiter erhöht werden:

$$\theta_{\min} = 0,475 \frac{\lambda}{nR} . \quad (2.8)$$

Bei der Abbildung periodischer Objekte mit Abstand d kann die Auflösung durch eine geeignete Mikroskopoptik mit numerischer Apertur $NA = n \sin \alpha$ (α ist der Öffnungswinkel der Linse) noch weiter reduziert werden (Abbesches Auflösungsvermögen, [26]):

$$d_{\min} = 0,5 \frac{\lambda}{NA} . \quad (2.9)$$

Eine weitere Erhöhung der optischen Auflösung muss durch Einsatz anderer Abbildungstechniken erreicht werden².

2.2 Optische Auflösung unterhalb des Beugungslimits

Das optische Nahfeldmikroskop (NSOM; engl.: **N**earfield-**S**canning-**O**ptical-**M**icroscope) nutzt als submikroskopische Strahlungsquelle bzw. Antenne eine Nahfeldsonde, welche im Abstand von wenigen Nanometern rasterförmig über der Probenoberfläche bewegt wird. Die Auflösung wird dabei durch die Sondengeometrie und nicht durch die Strahlungswellenlänge bestimmt³. Empfindliche, reproduzierbare Messungen werden durch Sonden mit definierter Geometrie und hoher Strahlungstransmission erreicht.

Die Realisierung eines optischen Nahfeldmikroskops wurde bereits 1928 von E. H. Synge [27] vorgeschlagen, um die Auflösungsgrenze von ca. $\lambda/2$ (Gleichung 2.9) von optischen Geräten zu unterschreiten.

Bethe [28] lieferte für diese Sonden die theoretischen Grundlagen: Er untersuchte die optische Transmission subwellenlängengroßer Aperturen. So ergibt sich bei einer Wellenlänge λ für eine Apertur mit Durchmesser a , wobei $a \ll \lambda$, in einem leitenden Schirm eine Abhängigkeit der Transmission T : $T \sim a^4$ [29]. Die Dämpfung nimmt demnach mit kleiner werdendem Durchmesser signifikant zu. Ein theoretisches Modell eines NSOMs wurde 1956 durch J. A. o'Keefe [30] vorgestellt. Allerdings fehlten zu dem damaligen Zeitpunkt

²Ernst Abbe (1840-1905): „Vielleicht, dass es in Zukunft dem menschlichen Geist gelingt, sich noch Prozesse und Kräfte dienstbar zu machen, welche auf ganz anderen Wegen die Schranken überschreiten lassen, welche uns jetzt als unübersteiglich erscheinen müssen. Nur glaube ich, dass diese Werkzeuge mit heutigen Mikroskopen kaum etwas anderes als den Namen gemeinsam haben werden.“

³Ein medizinisches Beispiel dieses „Beugungslimit-umgehenden“ Nahfeldeffekts ist das Abhören mit einem Stethoskop: Das Herz schlägt mit einer Frequenz $f = 99$ Schläge/min = 1,65 Hz (Prüfling). Die Schallgeschwindigkeit beträgt $c = 330$ m/s. Es ergibt sich eine Wellenlänge $\lambda = c/f = 200$ m und somit eine Ortsauflösung von ca. $\lambda/2 = 100$ m im Fernfeld. Im Nahfeld jedoch kann die Position der Schallquelle „Herz“ mit Hilfe der Sonde (Stethoskopöffnung $d = 1...2$ cm) bis auf wenige Zentimeter genau lokalisiert werden.

die technischen Voraussetzungen, um a) derartige Sonden herzustellen und b) diese Sonden in ausreichender Präzision vor den Proben zu positionieren. 1972 wurde die Idee von E. H. Synge erstmals durch E. A. Ash und G. Nicholls [31] mit elektromagnetischen Wellen realisiert: Sie erreichten bei Messungen an einer Metallfilmprobe mit Mikrowellen eine Auflösung unterhalb des Beugungslimits (sogenannte sub- λ -Auflösung). Eine technische Umsetzung für den optischen Spektralbereich erfolgte jedoch erst mit der Erfindung des Rastertunnelmikroskops 1981 (STM; engl.: **S**canning-**T**unneling-**M**icroscope) durch G. Binnig und H. Rohrer (IBM Zürich, [32]), welche das Problem lösten, eine Sonde mit einer Genauigkeit von weniger als einem Nanometer mit Hilfe von Piezo-Translatoren gegenüber einer Probe zu platzieren. D. W. Pohl, W. Denk und M. Lanz waren 1984 (IBM Zürich, [2]) die ersten, die ein NSOM vorstellten.

2.3 Apparative Varianten

Der apparative Aufbau soll in diesem Abschnitt nur kurz angedeutet werden. Einen Überblick zu verschiedenen NSOM-Varianten lieferten 1994 H. Heinzelmann und D.W. Pohl [33]. Zur vertiefenden Studie sei auf einschlägige Fachbücher und Artikel [29, 34–36] verwiesen.

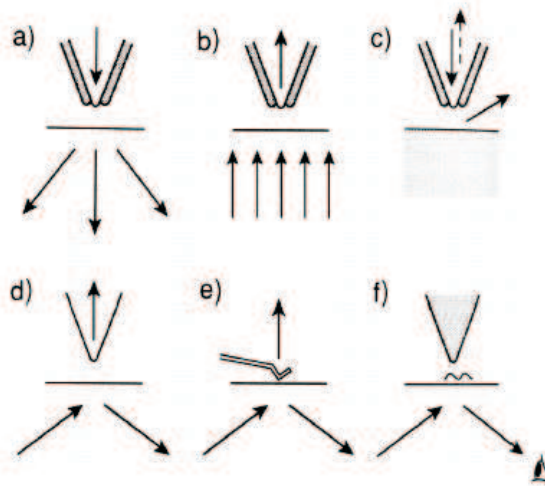


Abbildung 2.2: Die Abbildungen zeigen verschiedene NSOM-Varianten: a) Beleuchtungsmodus, b) Sammelmodus, c) Reflexionsmodus, d) Evaneszenzfeldmodus (Photon-Scanning-Tunneling-Microscope (PSTM)), e) PSTM mit Scherkraftauflösung (Atomic-Force-Microscope (AFM)) und f) Plasmonendetektionsmodus (Scanning-Plasmon-Nearfield-Microscope (SPNM)). Die Abbildung ist [33] entnommen.

2.3.1 Detektionsmechanismen

Prinzipiell kann zwischen zwei grundsätzlichen Typen, dem Apertur-NSOM und dem Antennen-NSOM, unterschieden werden.

Das Apertur-NSOM besitzt eine Sonde mit einer Apertur, welche kleiner als die Wellenlänge des verwendeten Lichtes ist (sub- λ -Apertur). Durch diese Sonde wird die Probe beleuchtet (Abbildung 2.2a) oder das von der Probe reflektierte, gestreute oder emittierte Licht detektiert (Abbildung 2.2b). Je nach Aufbau kann dabei die Probe oder die Sonde zur Rasterung bewegt werden. Einen Überblick zu verschiedenen Sondentypen und deren Herstellung liefert ein Übersichtsartikel von R. Kassing et al. [37]. Als Sondenmaterial bieten sich optische Fasern an, da das Licht an die Probe bzw. zu einem Detektor geführt werden kann.

Die Sonde des Antennen-NSOM stört das evaneszente Feld (siehe Abschnitt 3.3) der unter Totalreflexion beleuchteten Probe [38, 39]. Dieses evaneszente Feld liefert Informationen über die lokale Probenbeschaffenheit. Bei der Störung des evaneszenten Feldes durch die Sonde wird das Feld lokal in ein propagierendes Feld umgewandelt, welches über die Sonde (=Antenne) zum Detektor transportiert werden kann (Abbildung 2.2c und 2.2d).

Das aperturlose NSOM mit dielektrischer, nicht metallisierter Sondenspitze stellt eine neue Variante dar, bei welcher sowohl die Anregung der Probe als auch die Detektion des Messsignals durch die Spitze erfolgt. Für eine detaillierte Beschreibung zu aperturlosen NSOM-Varianten sei auf die Dissertationsschrift von Jan Preußner [40] sowie den Science-Artikel von F. Zenhausern et al. [41] und die Review-Artikel von U. Fischer und D. Pohl [42], C. Gerard et al. [43] und E. J. Sánchez et al. [44] verwiesen.

2.3.2 Sondenpositionierung

Es haben sich verschiedene Betriebsarten entwickelt, welche während des Rasterprozesses und der Datenerfassung unterschiedliche Regelgrößen konstant halten:

- konstanter Abstand zwischen Sonde und Probenoberfläche (engl.: constant force) [45–48],
- konstante Höhe der Sonde (engl.: constant height) [49–52],
- konstanter Kontakt (engl.: constant contact) [53] und
- konstante Intensität des detektierten optischen Signals (engl.: constant intensity).

Für die Betriebsarten, die ein topographisches Signal zur Positionierung der Sonde nutzen, hat sich als Standardmethode moderner Nahfeldmikroskope die Scherkraftdetektion durchgesetzt (siehe Abschnitt 2.6). Dabei wird die Sonde mit Hilfe eines Anregungspiezos in resonante Schwingungen versetzt, welche lateral zur Probenoberfläche ausgerichtet sind. Die resultierende Amplitude der Sonde sollte dabei deutlich kleiner als die Apertur sein. Wird diese Sonde mit Hilfe eines zweiten Piezos, meist einem Piezoaktuator, bis auf einen Abstand von wenigen Nanometern an die Probenoberfläche angenähert, tritt aufgrund von Scherkräften eine Amplituden-Dämpfung (Abschnitt

2.6, Abbildungen 2.16 und 2.17) auf, welche durch Lock-In-Technik ausgewertet wird. Zusätzlich vergrößert sich die Resonanzfrequenz (Abschnitt 2.6, Abbildung 2.15).

Als Mechanismen, welche für das Auftreten der Scherkräfte verantwortlich sind, werden folgende Effekte in Betracht gezogen [29]: elektrostatische Kräfte, Dipol-Dipol-Wechselwirkungen, van-der-Waals-Wechselwirkungen sowie statistisches Aufschlagen der Spitze auf die Oberfläche [54]. Zusätzlich gibt es Hinweise auf unterschiedliches Dämpfungsverhalten verschiedener Probenoberflächen [55]. So zeigten R. L. Williamson et al. [56], dass verschiedene Probenmaterialien eine Phasenverschiebung und somit Artefakte im optischen Bild bewirken. Die Scherkraft sollte daher „off-resonance“ detektiert werden. Ähnliche Beobachtungen gab es bei verschiedenen, bei der Präparation der Messköpfe verwendeten, Klebstoffen und verschiedenen Sondenformen.

In der Betriebsart „constant force“ gelingt eine Entkopplung zwischen der Topographie der Oberfläche und dem detektierten optischen Signal. Durch dieses zusätzliche topographische Bild wird die Interpretation von Artefakten im optischen Bild deutlich erleichtert. Ziel dieser Arbeit war daher die Realisierung eines optischen Nahfeldmikroskops, welches einen „constant force“-Betrieb ermöglicht.

2.4 Sondenpräparation

Bei der Präparation der Sonden ist zu beachten, dass Licht nur dann in die Sondenapertur einkoppelt, wenn es die Apertur unter dem Akzeptanzwinkel trifft. Dieses Verhalten ist vergleichbar mit der Beleuchtung einer optischen Faserendfläche: Nur die Strahlen, welche innerhalb des durch den Akzeptanzwinkel ⁴ α aufgespannten Konus liegen, koppeln in den Faserkern ein und es gilt

$$NA := \sin \alpha = \sqrt{n_K^2 - n_{CL}^2} . \quad (2.10)$$

Dabei bezeichnet NA die numerische Apertur, n_K den Brechungsindex des Faserkerns und n_{CL} den Brechungsindex des Fasermantels (Abbildung 2.3). Es ist eine maximale Transmission (z.B. von der Probe zum Detektor) erwünscht. Wird die Sonde gleichzeitig zur Abstandsdetektion genutzt (siehe Abschnitt 2.6), hat die Länge der Sonde großen Einfluß auf die Güte der topographischen Detektion: bei großen Sondenlängen können zusätzliche Moden anschwingen, welche die Abstandsregelung stören.

Einen theoretischen Ansatz, die optimale Spitzenform zu berechnen, lieferten P. Moar et al. [57]. Die Parameter für die Sondenpräparation sind: der Aperturdurchmesser, die metallische Beschichtung, die Spitzenlänge und der Öffnungswinkel (engl.: cone half-angle) der Sonde.

⁴Aufgrund der Brechung beim Übergang zwischen zwei Materialien ergibt sich ein Maximalwinkel, unter dem das Licht in das zweite Material einkoppelt, der als Akzeptanzwinkel bezeichnet wird.

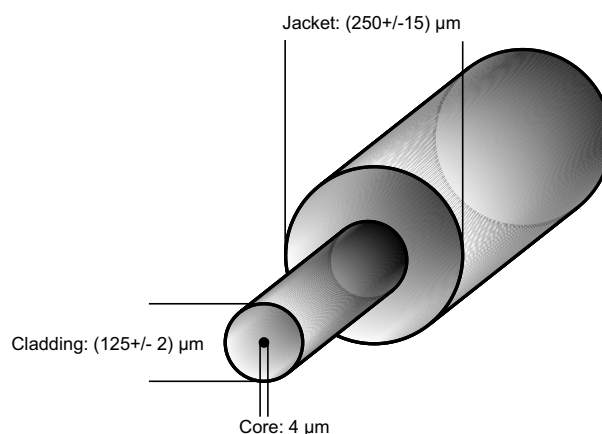


Abbildung 2.3: Schematische Skizze der verwendeten 630 nm Single-Mode-Faser [58] bestehend aus Faserkern (engl.: core), Fasermantel (engl. cladding) und Schutzbeschichtung (engl.: jacket).

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Glasfaserspitzen als Sonden eingesetzt. Abbildung 2.3 zeigt den schematischen Aufbau des verwendeten Fasertyps⁵.

Es gibt prinzipiell zwei Techniken, optische Glasfaserspitzen herzustellen: das Spitzenätzen [60, 61], basierend auf dem Patent von D. R. Turner [62], und das von Betzig et al. vorgestellte Faserziehen [63].

Das Ätzen von Glasfasern erfolgt z.B. durch Eintauchen der Faserenden in ein Schichtsystem aus Flusssäure und organischen Lösungsmitteln. Durch unterschiedliche Oberflächenspannung wird die Glasfaser an der Schichtgrenze unterschiedlich stark mit Flusssäure benetzt, was einen inhomogenen Abtrag zur Folge hat und damit zur Spitzenbildung führt. Das Ätzen von Glasfasern dauert üblicherweise ca. drei Stunden. Zudem ist aufgrund der notwendigen präzisen Parameterkontrolle (Wassergehalt der Flusssäure, Temperatur etc.) eine Endkontrolle der Spitzen z.B. durch Rasterelektronenmikroskopie notwendig. Allerdings weisen geätzte Faserspitzen eine deutlich rauhere Oberfläche als gezogene Faserspitzen auf (Abbildung 2.4), auf der etwaige Beschichtungen besser haften. Es zeigte sich jedoch, dass die nachfolgenden Beschichtungen im Bereich hoher Rauigkeit Defekte und Inhomogenitäten aufwiesen.

Das Ziehen von Faserspitzen erfolgt meist durch kommerziell erhältliche Geräte bestehend aus einer Heizung (in Form eines CO₂-Lasers) und einer Einspann- und Ziehvorrichtung. Die Spitzenform kann über einfach justierbare Parameter (Heiztemperatur, Kraft etc.) kontrolliert werden. Die Herstellung einer Faserspitze ist innerhalb einer Minute abgeschlossen und ist gut reproduzierbar [64, 65].

Der optische Transmissionskoeffizient liegt bei gezogenen Spitzen bei $T = 10^{-5}$ bis 10^{-6}

⁵Ein guter, technischer Überblick zu unterschiedlichen Fasertypen, deren Herstellung, Kopplung etc. ist in [59] zu finden.

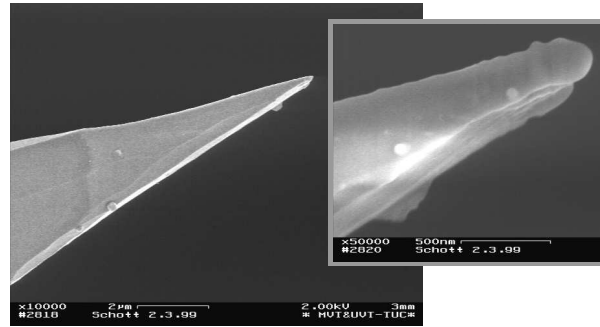


Abbildung 2.4: Die Abbildung zeigt Rasterelektronenmikroskopaufnahmen einer nach dem Ätzverfahren präparierten, unbeschichteten Faserspitze. Die Oberfläche weist im oberen Teil des Spitzenkonus eine raue, teils scharfkantige Oberfläche auf. In Spitzennähe ist deutlich (vergrößerter Ausschnitt, kleines Bild) eine unerwünschte „Tropfenbildung“ zu erkennen.

und bei geätzten Fasern bei $T = 10^{-4}$ bis 10^{-3} [61], da der Faserkern beim Ziehen ebenfalls verkleinert wird.

Neben diesen klassischen Verfahren gibt es auch Kombinationen aus beiden Verfahren [66], oder modifizierte Verfahren [67–69], wie das durch R. Stöckle et al. [70] 1999 vorgestellte Röhrrchen-Ätzen (engl.: tube-etching). In diesem Verfahren wird dem zu ätzenden Glasfaserende ein Röhrrchen aufgesetzt, bevor es in die Flusssäure eingebracht wird. Dieses Verfahren soll stabiler gegenüber mechanischen Schwankungen und Temperaturschwankungen sein und eine hohe Reproduzierbarkeit sichern.

Moderne, kommerzielle Lösungen zur Fabrikation von NSOM-Spitzen setzen auf die Produktion von Spitzen auf Polymer-Basis [71] oder SiO_2 -Basis [72]. Dazu werden beispielsweise Tieftemperaturoxidationen und selektive Ätzverfahren [73] oder ein auf Basis photoplastischer Materialien bestehendes Lithographie- und Gussverfahren [74] eingesetzt. Die Spitzen werden nach ihrer Prüfung auf polierte Faserenden aufgebracht. Auch wird der gleichzeitige Einsatz der Spitzen in kombinierten Scherkraft- (AFM) und optischen Nahfeldmikroskopen (NSOM) angestrebt. Dazu werden die NSOM-Spitzen entweder gebogen [75] oder in AFM-Cantilever integriert [72, 76–80]. Für den Einsatz im UV-Spektralbereich wird der AFM-Cantilever mit einer Quarzglas-Sonde versehen [81]. Zur Vermeidung hoher Verluste werden Ansätze verfolgt, in denen die Spitze direkt mit fluoreszierenden Molekülen dotiert [82] oder direkt auf die Austrittsfläche eines VCSELs (Vertical Cavity Surface-Emitting Laser) aufgebracht wird [83]. In letzterem Fall lassen sich die Produktionsparameter gut kontrollieren, was eine Massenproduktion oder die Erstellung von Nahfeldspitzen-Arrays ermöglicht.

Während dieser Arbeit wurde sowohl das Spitzenätzen (Abbildung 2.4) als auch das Ziehen von Faserspitzen eingesetzt. Aufgrund der schnelleren Herstellung, der einfacheren Parameterkontrolle und der höheren Reproduzierbarkeit hat sich das Faserziehen durch-

gesetzt.

2.4.1 Ziehen von Faserspitzen

Betzig et al. [63] stellten 1991 erstmals das Verfahren des Faserziehens (engl.: fiber pulling) vor. Dazu wird eine Glasfaser lokal stark aufgeheizt und zu zwei spitzen Enden auseinandergezogen. Dabei spielt die Fließtemperatur von Quarzglas eine entscheidende Rolle: Der Schmelzpunkt von kristallinem SiO_2 liegt bei 1700 °C [84]. Auch oberhalb dieser Temperatur behält Quarzglas eine hohe Viskosität, was dazu führt, dass tendenziell eher lange Glasfäden als scharfe Spitzen beim Ziehen entstehen.

Ein aus dem Bereich der Biologie stammendes Micropipetten-Ziehgerät wurde vom Hersteller für das Ziehen von Glasfasern modifiziert und wird unter der Bezeichnung „Micropipette-Puller P-2000“ [85] vertrieben. Dieses System heizt den zu ziehenden Bereich der unter definiertem Zug stehenden Faser durch einen fokussierten 20 W CO_2 -Laser (Wellenlänge $\lambda=10,6 \mu\text{m}$) auf. Da Glas in diesem Wellenlängenbereich absorbiert, wird die eingestrahlte Leistung in Wärme umgesetzt⁶. Das optische Heizen hat gegenüber einer Filamentheizung den Vorteil, dass das Objekt nicht mit metallischen Rückständen verunreinigt wird. Diese Verunreinigung ist insbesondere im ursprünglichen Anwendungsgebiet der Biologie unerwünscht [86]. Zudem lässt sich optisches Heizen schneller schalten und präziser regeln. Dies ermöglicht mehrstufige, schnelle Ziehabläufe. Erste Messungen zum Ziehen von optischen Glasfasern mit einem Vorgängermodell erfolgten bereits 1995 durch G. A. Valskovic et al. [87].

Bevor die Faser gezogen werden kann, müssen sämtliche Schutzschichten bis auf den Fasermantel (siehe Abbildung 2.3) entfernt werden. Bei Fasern mit Plastikmänteln müssen diese ebenfalls vorher entfernt werden. Hier bieten sich mehrere Techniken an: mechanisches Abziehen (engl.: stripping), Abbrennen oder Lösen in Aceton. Die verwendete Monomode-Faser (Typ FS-SN-3224 [58]) besitzt eine Acrylat-Schutzschicht. Die Reinigung der Faser nach dem mechanischen Abziehen erfolgt mit Isopropanol; bei Verwendung von Aceton würde ein dünner Acrylatfilm entstehen. Beim Ziehen einer derart verschmutzten Faser entstehen nicht reproduzierbare Ergebnisse.

Der Ziehvorgang der in den Haltebacken eingespannten Faser, wird im Folgenden schematisch beschrieben (Abbildung 2.5): Der Fasertyp wird über den Parameter FILAMENT vorgewählt. Leichte Zuggewichte halten die Faser unter Spannung. Der Laser wird eingeschaltet, wobei die abgegebene Leistung über den Parameter HEAT vorgewählt wird. Wird die Fließtemperatur erreicht, wird der erwärmte Bereich durch die Zuggewichte auseinandergezogen. Diese Bewegung wird durch das Gerät detektiert. Wird eine Sollgeschwindigkeit, die über den Parameter VELOCITY wählbar ist, der beiden Faserteile erreicht, beginnt nach einer Verweilzeit (Parameter DELAY) der eigentliche Ziehvorgang, dessen Kraft über den Parameter PULL eingestellt wird. Es besteht die Möglichkeit, mehrere

⁶Der Transmissionsbereich von kristallinem SiO_2 liegt bei 0,18 - 3,6 μm [84].

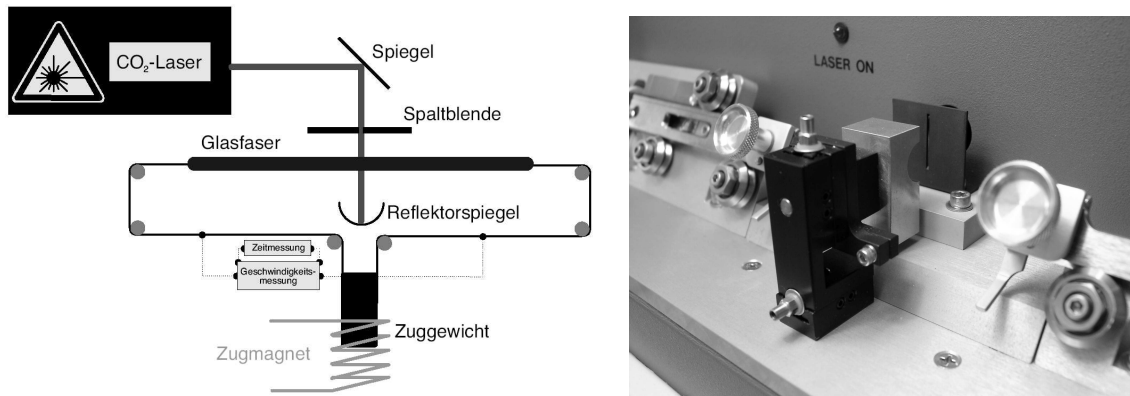


Abbildung 2.5: Die schematische Darstellung zeigt das Prinzip des verwendeten Mikropipetten-Ziehgeräts [88]. In der Photographie sind die (mit Rändelschrauben bestückten) Haltebacken, der messingfarbene Hohlspiegel (und dessen Justiereinheit (schwarz)) sowie die zusätzlich in den Strahlengang eingebrachte Spaltblende zu erkennen.

Ziehvorgänge in einer Abfolge durchzuführen, bis die Faser getrennt wird.

Messungen haben gezeigt, dass die Parameter das Endergebnis wie folgt beeinflussen: Kleine Heizleistungen und/oder Sollgeschwindigkeiten führen zu kurzen, meist abgerissenen Spitzen, während zu große Heizleistungen bzw. Sollgeschwindigkeiten zu lange, faserige Spitzen mit undefinierter Form liefern. Mit zu großer Heizleistungen hergestellte Spitzen reagieren zudem aufgrund innerer thermischer Spannungen sehr empfindlich auf äußere Erschütterungen, was den Transport und den Einbau im Messkopf erschwert. Kleine Verweilzeiten und/oder Zugkräfte liefern lange, undefinierte Spitzen mit teilweise gekräuselten Enden, während große Verweilzeiten bzw. Zugkräfte zu kurzen, stumpfen Fasern führen.

Leider ließ sich die Spitzenlänge nicht unter einen Millimeter verkürzen. Rücksprachen mit dem Hersteller [85] und weiteren Anwendern [88] ergaben, dass dieses bei dem ursprünglichen Verwendungszweck⁷ nicht gefordert sei. Als Modifikation des Geräts wurde zur Verkleinerung der Strahltaille im Bereich der Faser eine zusätzliche Spaltblende (1 mm) eingebracht (vgl. Photographie in Abbildung 2.5). Abbildung 2.6a zeigt eine gezogene Spitze mit eingebrachter Schlitzblende und optimierten Ziehparametern (HEAT: 350, FILAMENT: 0, VELOCITY: 5, DELAY: 6, PULL: 100) : der Spitzenkonus hat eine Länge $l \approx 350 \mu\text{m}$. Eine weitere Verkleinerung der Spaltblende brachte keine reproduzierbaren Ergebnisse: Es bildeten sich Glasfäden aus, die Faser riss undefiniert ab oder wurde trotz präziser Justage gar nicht gezogen. Es wurde daher ein Parametersatz gewählt, der einen Kompromiss zwischen Reproduzierbarkeit, zeitlichem Aufwand und Haltbarkeit darstellt.

Aus Rasterelektronenmikroskopaufnahmen wurde für diesen Parametersatz ein mitt-

⁷In der Biologie erfolgt das elektrolytische Ankoppeln von Signaldrähten an Zellwände mit sehr feinen Glaspipetten [86].

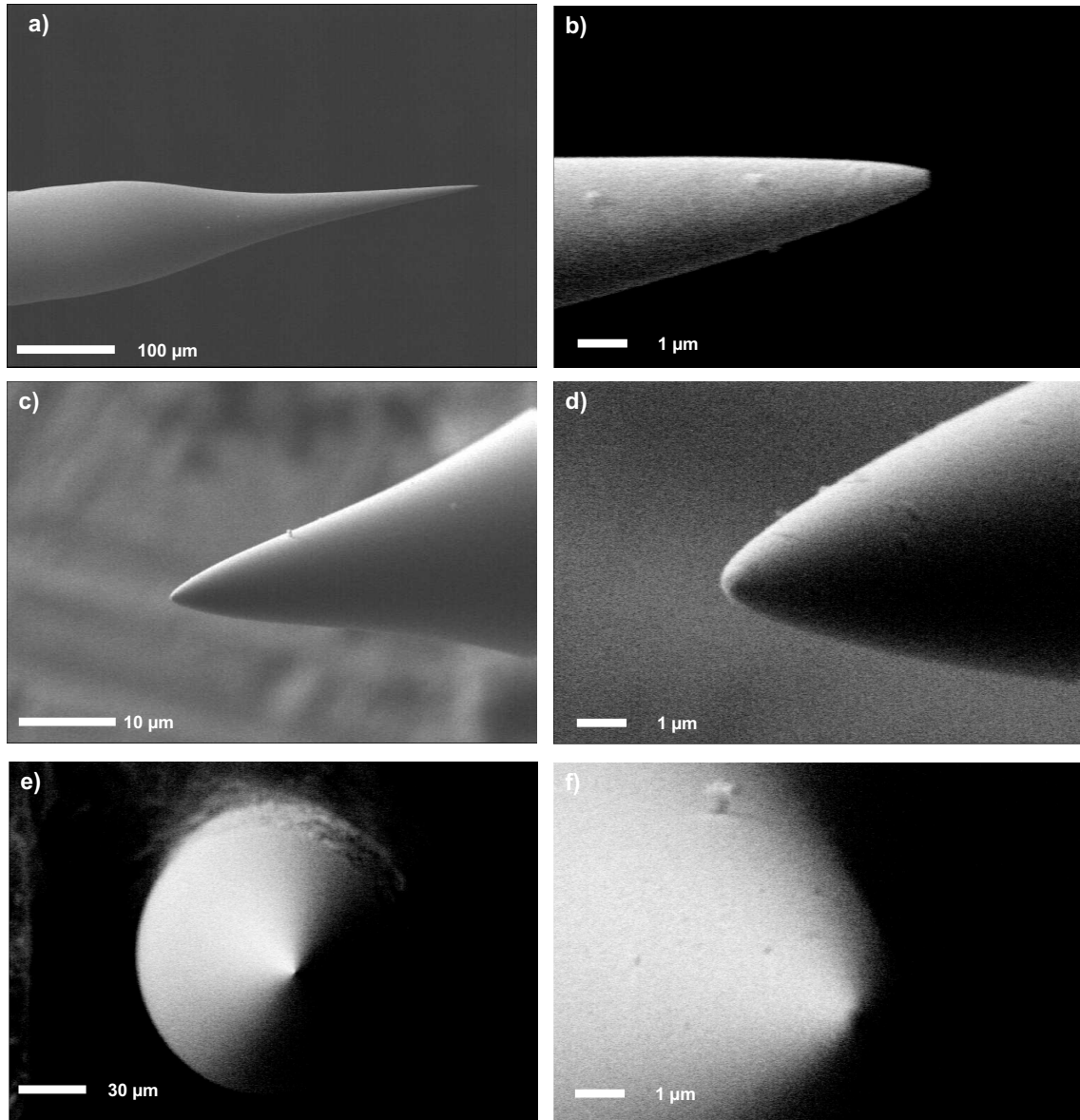


Abbildung 2.6: Rasterelektronenmikroskopaufnahmen einer typischen Glasfaserspitze: Auf die Spitze wurde zuvor eine Goldschicht mit einer Dicke von einigen Ångström aufgedampft. Abbildungen a) und b) zeigen die Spitze unter einem Winkel von $\beta = 90^\circ$, c) und d) unter einem Winkel von $\beta = -20^\circ$ und e) und f) unter einem Winkel von $\beta = 3^\circ$ zum Elektronenstrahl.

lerer Konuswinkel von $\alpha = (17 \pm 2)^\circ$ (Abbildung 2.6a), eine mittlere Spitzenlänge von $l = (370 \pm 20)$ nm (Abbildung 2.6a) und ein mittlerer Spitzendurchmesser von $d = (190 \pm 20)$ nm (Abbildung 2.6b) ermittelt. Aufnahmen unter verschiedenen Winkeln (Abbildung 2.6c-f) zeigen eine leicht abgeplattete Spitzenform mit glatter Oberfläche. Diese flache Spitzenform wirkt sich vorteilhaft bei der Bildung der Apertur aus (Abschnitt 2.4.2), welche durch die in Abschnitt 2.6 aufgezeigten wirkenden Kräfte nicht zerstört wird. Messungen an mehreren unter gleichen Bedingungen gefertigten Spitzen zeigen eine sehr gute Reproduzierbarkeit.

2.4.2 Beschichtung von Faserspitzen

Nach der erfolgreichen Präparation der Spitze wird diese durch eine Beschichtung mit einer Apertur (Durchmesser \ll Wellenlänge) versehen. Dazu wird die rotierende Spitze unter einem Winkel zum Verdampfer mit Aluminium bedampft.

Aluminium bietet sich als Beschichtungsmaterial an, da es sich ohne großen Aufwand thermisch verdampfen lässt, eine hohe Reflektivität bei optischen Frequenzen besitzt und preiswert ist. Einen Überblick der üblichsten Methoden der Al-Verdampfung geben G. Polanski und J. P. Toennis [89]. N. G. Semaltianos [90] zeigt Charakterisierungsmöglichkeiten dicker ($d = 18$ bis 100 nm), schnell aufgebracht ($v = 1$ bis 20 Å/s) Aluminium-Schichten auf. Die Eindringtiefe für sichtbares Licht in Aluminium liegt bei $d_p = 16$ nm [91], so dass eine Schichtdicke im Bereich $d = 100$ bis 200 nm auf der Faserspitze notwendig ist, um Leckagen außerhalb der gewünschten Apertur zu verhindern. Da es sich bei der gezogenen Faserspitze um eine verhältnismäßig glatte Oberfläche handelt und Standard-Al-Beschichtungen nicht sehr widerstandsfähig gegen hohe Laserintensitäten und mechanische Belastungen sind, wird oftmals das Aufbringen von Adhäsionsbeschichtungen (Chrom, Titan oder Oxidschichten) zwischen Faser und Al-Beschichtung diskutiert [65, 88].

Es wurde eine Beschichtungskammer entworfen, welche die von S. Madsen et al. [65] geforderten Parameter hinsichtlich des Anfangs- und Enddrucks und der Verdampfungsrate erfüllt: Es wird bei Drücken $p \leq 5 \cdot 10^{-6}$ mbar und einer Verdampfungsrate von $v = 100$ nm/min gearbeitet, um eine Schichtdicke von $d = 150$ nm zu erreichen. Die Kammer nimmt eine rotierende Halterung (Revolver) auf, welche acht Fasern von ca. 1 m Länge hält.

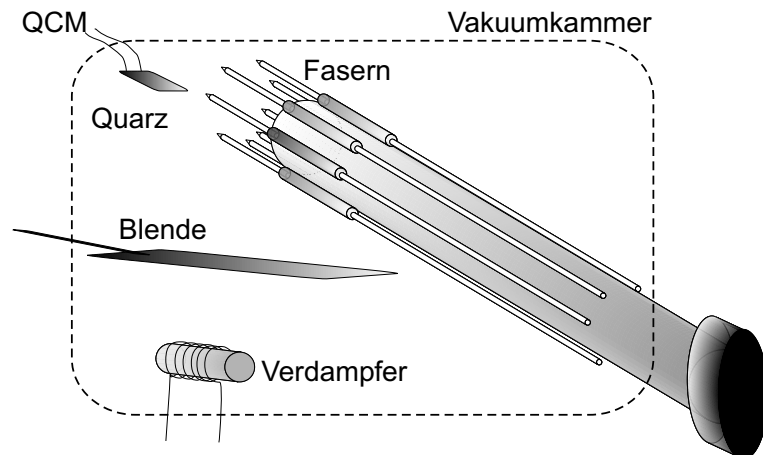


Abbildung 2.7: Schematischer Aufbau der verwendeten Beschichtungskammer.

Abbildung 2.7 zeigt den schematischen Aufbau der verwendeten Beschichtungskammer. Sämtliche Komponenten befinden sich in einer Vakuumpammer (gestrichelte Linie). Die Faserhalterung kann mit acht Fasern bestückt werden und wird über einen externen

Schrittmotor (1 Umdrehung/s) betrieben. Die Spitzen stehen ca. 2 cm über die Halterung hinaus, damit sie nicht durch diese abgeschattet werden.

Der Verdampfer besteht aus einer Wolfram-Wendel aus einem dreifach verdrehten W-Draht von je 0,5 mm Durchmesser, einer Länge von 20 mm bei sechs Wicklungen und ist bestückt mit einem Al-Draht (Länge $l = 200$ mm, Durchmesser $d = 2$ mm, Masse $m = 0,1$ g).

Vor der Beschichtung werden die Fasern durch eine Blende abgeschattet und der Verdampfer vorgeheizt (4 min bei $I = 15$ A und $U = 0,5$ bis 1 V). Eine Verdampfungsrate von $v = 100$ nm/min wird bei $I = 40$ A und $U = 2$ bis 3 V erreicht. Diese wird nach dem Vorheizen bei geschlossener Blende eingestellt, um eine Beschichtung der Fasern mit Al-Oxidverbindungen, welche auf der Oberfläche des Al-Drahtes vorhanden sind, zu verhindern. Die Blende wird dann nach weiteren 30 bis 60 s geöffnet und der Beschichtungsvorgang beginnt.

Der hier beschriebene Verdampfer erzielt eine maximale Schichtdicke von $d \approx 250$ nm auf den Faserspitzen und kann erneut mit einem Al-Draht bestückt werden.

Die Schichtdicke wird mit einem kalibrierten QCM-(engl.: **Q**uartz-**C**ystal-**M**onitor)-Schichtdickenmessgerät [92] während der Schichtherstellung kontinuierlich bestimmt und bei Erreichen der gewünschten Dicke wird die Blende geschlossen. Die Schichtdickenbestimmung erfolgt über die Messung der Änderung der Eigenfrequenz des verwendeten Quarzplättchen durch das aufgebrachte Material [93, 94]. Die Frequenzänderung ist materialabhängig [95]: Das verwendete Quarzplättchen (Resonanzfrequenz $f_0 = 6$ MHz) ändert seine Eigenfrequenz um $\Delta f = -8$ kHz bei einer Al-Schichtdicke von $d = 130$ nm auf den Fasern. Die maximale Änderung der Eigenfrequenz eines Quarzplättchens beträgt $\Delta f_{\max} = 300$ kHz.

Bei der Bestimmung der Schichtdicke auf der Faser ist zu beachten, dass sich a) aufgrund der Krümmung und der Rotationsbewegung der Faser ein Korrekturfaktor von π und b) aufgrund des Winkels α zwischen Faser und Quarzplättchen ein Korrekturfaktor von $\cos \alpha$ gegenüber der gemessenen Schichtdicke auf dem ortsfesten Piezoplättchen ergibt. Diese Korrekturfaktoren wurden bei der online-Messung der Schichtdicke mit dem Quarzplättchen eingebracht.

Zusätzlich ergibt sich aufgrund der Anordnung der Fasern im rotierenden Revolver ein Abstandsunterschied zwischen Faser und Verdampfer während des Beschichtungsvorganges. Eine Eigenabschattung der Fasern aufgrund der Drehbewegung findet ebenfalls statt. Diese sind vernachlässigbare Effekte, wie in der Dissertationsschrift von B. Hecht ausreichend diskutiert wurde [55].

Die korrekte Bestimmung der Schichtdicke mit dem Schichtdickenmessgerät und den beschriebenen Korrekturfaktoren wurde durch Tiefenprofilanalysen mit Hilfe einer Augermikrosonde überprüft und bestätigt.

Eine Begutachtung der Beschichtungsgüte erfolgt stichprobenweise mit einem Rasterelektronenmikroskop. Einige Bedampfungschargen wiesen Risse und Abplatzungen (Abbildung 2.8) auf. In der Praxis zeigte sich, dass eine schnelle Vorsortierung der Fasersonden mit Hilfe eines auf die Faser abgestimmten Laserdiodensystems erfolgen kann. Für eine 630 nm

Single-Mode-Faser (FS-SN-3224 [58]) wurde ein Laser mit Emissionswellenlänge $\lambda = 635$ nm und einer Leistung von $P = 4$ mW verwendet. Es wird Licht in die Faser eingekoppelt und mit einem Lichtmikroskop unter 20 bis 50-facher Vergrößerung die Faserspitze auf Leckagen und Güte (Körnigkeit) überprüft. Zusätzlich kann mit dieser Methode abgeschätzt werden, ob die Sonde eine Apertur aufweist: Körner im Bereich der Apertur stören das evaneszente Feld und wandeln es in ein propagierendes Feld um, welches mit dem Lichtmikroskop detektiert werden kann.

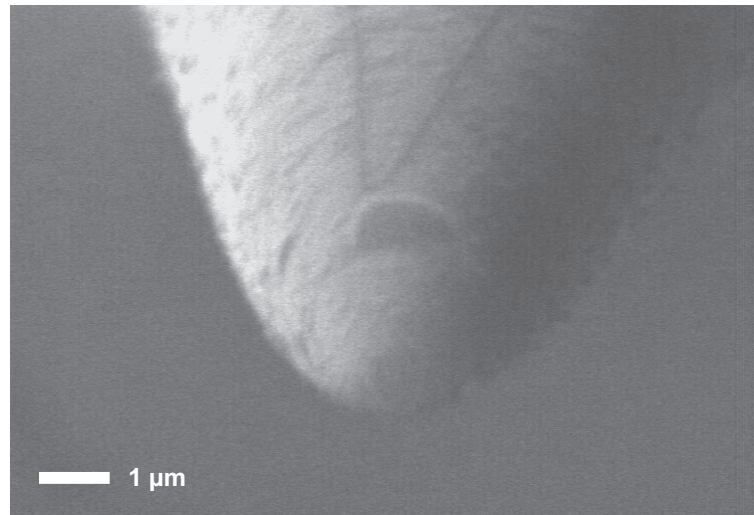


Abbildung 2.8: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme einer Al-beschichteten Glasfaserspitze (10000-fache Vergrößerung). Es sind deutlich Risse und Abplatzungen in der Beschichtung zu erkennen. Die Beschichtung weist in den nicht betroffenen Gebieten eine geringe Körnigkeit auf.

Beste Resultate wurden bei Aluminiumschichtdicken (auf der Faser) $d = (120 \pm 10)$ nm in $t = 60$ bis 90 s realisiert. Die hergestellten Spitzen weisen Aperturen von minimal $a = 150$ nm auf (Abbildung 2.9)⁸.

2.5 Aufbau des optischen Nahfeldmikroskops

Das im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute modulare optische Nahfeldmikroskop erlaubt sowohl eine rasternde Bewegung der Probe als auch der Sonde. Dies ermöglicht sowohl eine

⁸Dennoch kann es vorkommen, dass eine bedampfte Faserspitze keine Apertur aufweist. Dann gibt es verschiedene Methoden, eine Apertur an der Spitze zu erzeugen. Veerman et al. [96] und S. Pilevar et al. [97] stellten 1998 nahezu zeitgleich die Möglichkeit vor, die bedampfte Faserspitze mit einem Ionenstrahl definiert zu öffnen. Dazu wird die Faserspitze komplett mit Aluminium bedampft und die gewünschte Apertur durch einen rasternden Ionenstrahl erzeugt. Mit dieser Technik können Aperturen bis zu $a = 20$ nm erreicht werden [96]. Ein weiterer Vorteil besteht darin, Unregelmäßigkeiten in der Beschichtung an der Spitze definiert zu entfernen. Diese Unregelmäßigkeiten beeinflussen die Abstandskontrolle [55], stören die ideale runde Form der Apertur und somit die Polarisationserhaltung [98].

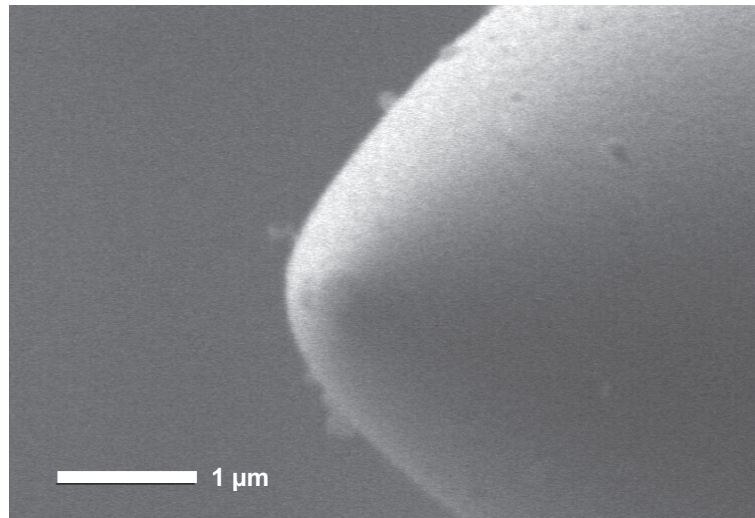


Abbildung 2.9: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme einer Al-beschichteten Glasfaser Spitze. Die Beschichtung weist geringe Körnigkeit auf. Die hergestellte Sonde besitzt eine Apertur von ca. $a = 150$ nm.

Durchlichtuntersuchung von Proben, wobei die Sonde und die Detektionseinheit ortsfest sind, als auch beispielsweise die Detektion von Interferenzstreifenstrukturen, wobei die gepumpte Probenoberfläche ortsfest ist.

Für die Rasterung (xy-Ebene) wird ein piezoelektrischer xy - $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ -Verschiebetisch mit Positionsstabilisierung [99] verwendet, die über eine I/O-Karte mit 24 digitalen Kanälen (Typ PIO-II, PC-ISA-Bus, [100]) angesteuert wird. Zusätzlich ist eine Verstärkerstufe [101] notwendig, welche die TTL-Signale der I/O-Karte für den Eingang der Verschiebetisch-Ansteuerung aufbereitet.

Die grobe Justage des Abstandes zwischen Sonde und Probe (z-Achse) erfolgt mit Feinverstellerschrauben ($300 \mu\text{m}$ Gewindesteigung, [103]) und eine feinere Justage durch einen Getriebebeschrittmotor (Typ SM 30, Halbschritt: $24,4$ nm, [104]) rechnergesteuert über eine Schrittmotorsteuerkarte (Typ PC-SM 30, [105]).

Zur Abstandsregelung wird ein Piezoaktuator (Typ NEC AEO505D08) mit einer Ausdehnung $\delta = (6,1 \pm 1,5) \mu\text{m}$ bei einer Spannung von $U = 100$ V; [106] verwendet. Dieser wird über einen 10-fach Hochspannungsverstärker [107] angesteuert, welcher wiederum seine Steuerspannung ($0 \dots 10$ V) über den Digital-Analog-Ausgang einer PC-Prozessorrechnerkarte [108, 109] erhält. Gleichzeitig werden über diese Karte in festen Zeitabständen die topographischen und optischen Messsignale über Analog-Digital-Eingänge aufgezeichnet und dem Rechner zur Abfrage bereitgestellt. Diese autarke Umsetzung ermöglicht eine Abstandsregelung und Datenerfassung in Echtzeit (siehe auch Abschnitt 2.6).

Die Abstandsregelung basiert auf der Scherkraftdetektion (Abschnitt 2.6). Dazu wird der gesamte Messkopf (Abbildung 2.11) in Schwingung versetzt und diese Schwingung mit

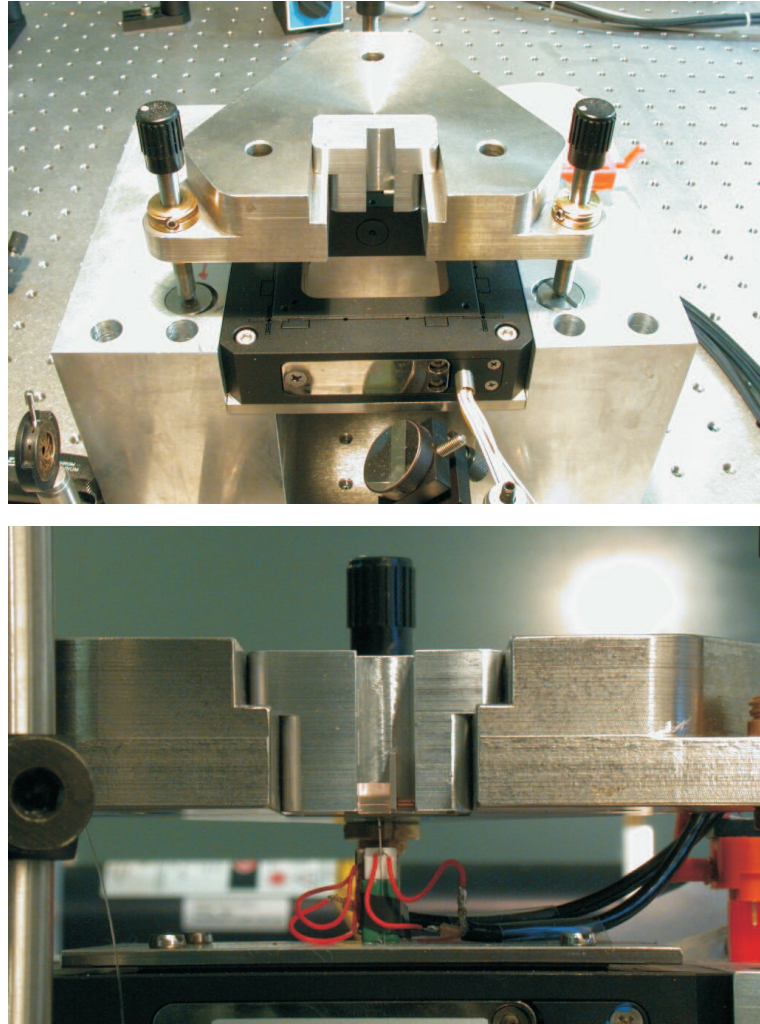


Abbildung 2.10: Der NSOM-Tisch besteht aus einem massiven Stahlblock, welcher auf einem schwingungsgedämpften Tisch montiert ist. In diesem Block ist die xy-Verschiebeeinheit fixiert, auf der wahlweise der Messkopf (untere Abbildung) oder die Probe auf einer Stahlplatte befestigt wird. Auf dem Stahlblock steht ein über Rändelschrauben höhenverstellbarer Dreieckstisch (Stahl) an dem die Probe bzw. der Messkopf befestigt wird. In der unteren Abbildung ist die zur Vermessung der DFB-Interferenzstrukturen an einem Glasprisma aufgebaute Konfiguration abgebildet. Auf der xy-Verschiebeeinheit ist der Messkopf montiert. Das Prisma wird über einen Laserstrahl, der senkrecht in die Bildebene fällt, gepumpt.

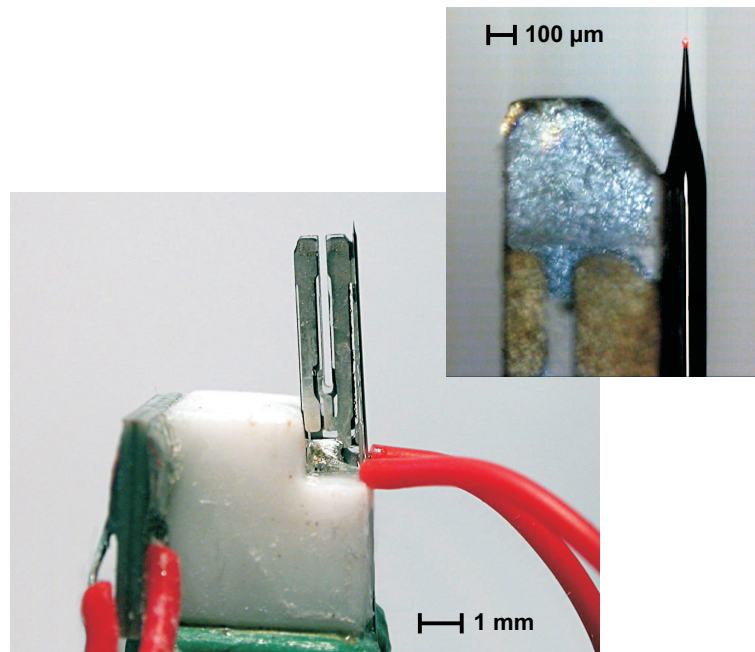


Abbildung 2.11: Der Messkopf besteht aus einer Glasfasersonde, welche an einer Piezostimmgabel fixiert ist. Diese wiederum ist an einem Keramikblock (weiß, Macor [102]) fixiert, an dem ein Piezoplättchen befestigt ist. Das Piezoplättchen wird mit Hilfe eines Frequenzgenerators in Schwingung versetzt, welche über den Keramikblock auf das Stimmgabel-Faserspitzen-System übertragen wird. An der Stimmgabel wird dann in Abhängigkeit von der Amplitude der Faserspitze eine proportionale Spannung detektiert. Der Keramikblock ist auf einem Piezoaktuator (grün) befestigt, mit dessen Hilfe sich der Abstand zwischen Spitze und Probe variieren lässt. Kleines Bild: Die beschichtete Faserspitze ist an der Piezostimmgabel fixiert. Zur Überprüfung der Apertur und Güte der Beschichtung wurde über ein Diodenlasersystem Licht ($\lambda = 632 \text{ nm}$) in die Faser eingekoppelt.

Hilfe einer Piezostimmgabel und mit Lock-In-Technik [110] ausgewertet. Als Dither- oder Rüttelpiezo wird ein serielles Biegeelement mit hohem Piezomodul, also hohem piezoelektrischem Kopplungsfaktor und hoher Dielektrizitätskonstante [111] eingesetzt. An der Piezostimmgabel wird die Faserspitze mit dünnflüssigem Sekundenkleber auf Cyanoacrylat-Basis [112] befestigt.

2.6 Abstandsregelung

Die nicht-beugungsbegrenzte Auflösung hängt empfindlich von dem Abstand zwischen Probe und Apertur ab. Diese Distanz wird über eine Wechselwirkung zwischen Probe und Faserspitze realisiert. Dabei wird die beste Auflösung erreicht, wenn die Spitze im konstanten Abstand $d \ll \lambda$ über die Oberfläche bewegt wird [63,113]. Allerdings ist unbedingt zu vermeiden, dass die Spitze die Probe berührt, da die Spitze sonst zerstört würde.

Erste optische Nahfeldmikroskope nutzten die Rückkopplungselektronik von Rastertunnelmikroskopen [114,115]. Dabei wird der Abstand über den Tunnelstrom zwischen Spitze und Probe geregelt. Zusätzlich können Tunnelstrombilder mit Hilfe von STMs (engl.: **Scanning-Tunneling-Microscope**) der entsprechenden Bereiche aufgenommen werden. Diese Regelung hat jedoch den großen Nachteil, dass nur leitende Proben verwendet werden können. Eine Erweiterung auf nicht leitfähige Proben wird durch die Kombination der Sonde mit einem Rasterkraftmikroskop (engl.: **Atomic-Force-Microscope**) erreicht. Diese Kombination liefert zusätzlich topographische Bilder der Probenoberfläche. Die Abstandsregelung erfolgt hier durch Normalkraft- [116] oder Scherkraftdetektion [117–122]. Als weitere Möglichkeit steht das optische NSOM-Signal als Regelgröße zur Verfügung [123]. Die in unserem Mikroskopkopf umgesetzte Scherkraftdetektion basiert auf der von K. Karrai und R. D. Grober 1995 [118,119] vorgestellten Abstandskontrolle zwischen Faserspitze und Oberfläche: die Spitze wird an einer Forke einer Piezostimmgabel⁹ fixiert (Abbildungen 2.11 und 2.12).

Dieses System wird mit Hilfe eines weiteren Piezos zur Schwingung angeregt. Die resultierende Wechselspannung, welche durch die Bewegung des Faser-Stimmgabel-Systems entsteht, wird über einen Lock-In-Verstärker ausgelesen.

Ein Maß für die Schwingung ist der Gütefaktor Q , welcher sich aus der Dispersionskurve bestimmen lässt:

$$Q = \frac{\nu_0}{\Delta\nu} . \quad (2.11)$$

Hierbei ist ν_0 die Resonanzfrequenz des Systems und $\Delta\nu$ die volle Frequenzbreite an der Stelle des halben Amplitudenmaximums (FWHM, engl.: **F**ull-**W**idth-**H**alf-**M**aximum). Aus dem Gütefaktor lässt sich die Reaktionszeit τ des Systems auf eine Störung berechnen:

$$\tau = \frac{Q}{2\pi\nu_0} . \quad (2.12)$$

⁹Resonanzfrequenz $f = 2^{15}$ Hz = 32,678 kHz

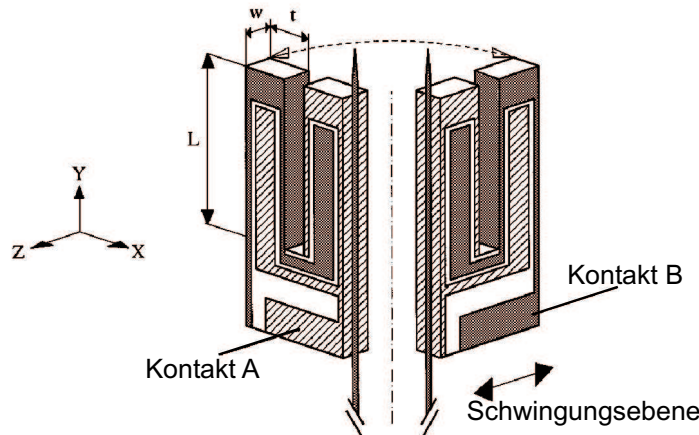


Abbildung 2.12: Skizze der eingesetzten Piezostimmgabel (Vor- und Rückseite). Die Abbildung ist [118] entnommen und modifiziert.

Somit hat die Güte des Stimmgabel-Faser-Systems maßgeblichen Einfluss auf die Rastergeschwindigkeit des Mikroskops. Daher wird bei der Präparation des Faser-Stimmgabel-Systems zunächst eine Dispersionskurve für die am Keramikblock fixierte Stimmgabel (Abbildung 2.13) bestimmt¹⁰.

In dieser Kurve ist die Amplitude der Schwingung, ausgedrückt durch die mit Lock-In-Technik bestimmte Wechselspannung, über die Frequenz des Ditherpiezos aufgetragen. Ist die Güte ausreichend groß, wird die Faser an der Stimmgabel fixiert und die Messung wiederholt (Abbildung 2.14).

Die Güte einer nicht fixierten Stimmgabel beträgt im Vakuum $Q_{\text{Vakuum}} = 64200$ bzw. in Luft $Q_{\text{Luft}} = 7500$. Für das System ohne Faser (Abbildung 2.13) ergibt sich eine Güte $Q = \nu_0 / \Delta\nu$ ($\Delta\nu$: FWHM der Stimmgabel-Resonanz-Amplitude) von $Q_{\text{Quarz}} = 3277$ ($\Delta\nu = 10$ Hz). Im Falle der fixierten Faser (Abbildung 2.14) verkleinert sich die Güte zu $Q = 122$ ($\Delta\nu = 275$ Hz). Die Resonanzfrequenz verschiebt sich von $\nu_0 = 32,777$ kHz (ohne Faser) zu $\nu_0 = 33,630$ kHz (mit Faser). Damit ergibt sich nach Gleichung 2.12 eine Reaktionszeit des Systems auf die Störung von $\tau = 578$ μs . Diese Zeit ist deutlich kleiner als die in Abschnitt 2.6.1 angegebene Verweildauer der Sonde pro Messpunkt von $t_{\text{punkt}} = 32$ ms,

¹⁰Dazu wurde eine Ansteuerung für den eingesetzten Lock-In-Verstärker entwickelt, welche ermöglicht, den Verstärker über einen PC als Frequenzanalysator zu betreiben: Es erfolgt eine Variation der Anregungsfrequenz des Ditherpiezos während des Auslesens von R und θ (Das Auslesen des Datensatzes erfolgt über die RS232-Schnittstelle unter dem Betriebssystem Windows NT 4.0.). Als Auswerteparameter für die Abstandsregelung im späteren Experiment dient dann allerdings die x-Komponente des Lock-In-Ausgangssignals. Dies hat zum einen technische Vorteile: die Aktualisierung der x- und y-Komponente findet am Ausgang des Verstärkers mit einer Frequenz von 256 kHz bei einer Bandbreite von 100 kHz statt (Die Updatefrequenz der übrigen Parameter wie z.B. R oder θ liegt bei 512 Hz bei einer Bandbreite von 200 Hz.) [110]. Zum anderen lässt sich durch Verschiebung der Phase direkt am Lock-In-Verstärker die x-Amplitude geeignet vergrößern.

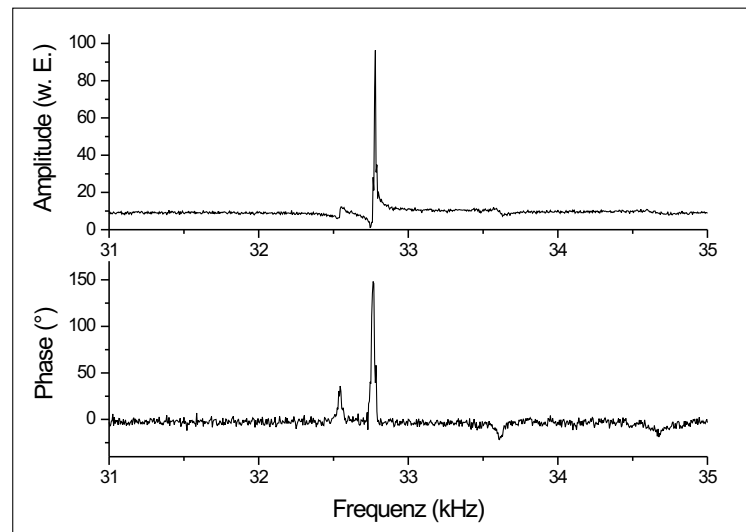


Abbildung 2.13: Dispersionskurve des Stimmgabel-Systems: Die Amplitude und Phase der am Macorblock fixierten Stimmgabel in Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz bei fester Anregungsamplitude.

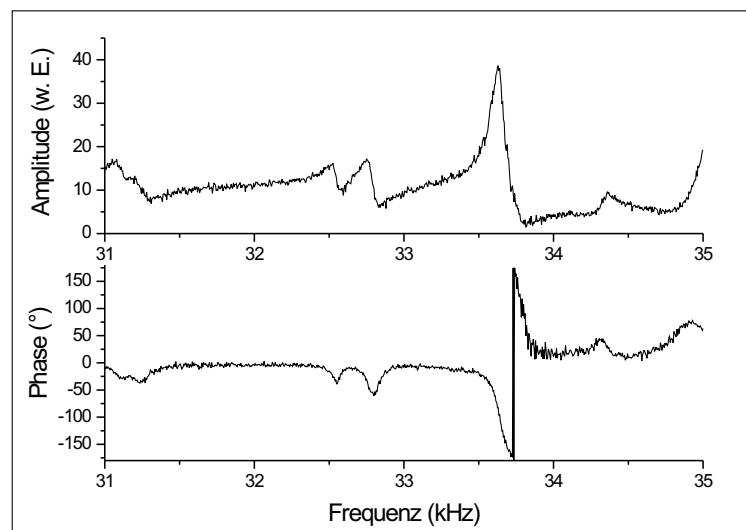


Abbildung 2.14: Dispersionskurve des Faser-Stimmgabel-Systems: Die Amplitude und Phase der Stimmgabel mit fixierter Glasfaserspitze in Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz bei fester Anregungsamplitude.

so dass eine präzise Detektion des Abstandes ermöglicht wird. Neben der verschobenen Resonanz treten, je nach Qualität der Klebestelle und Menge des verarbeiteten Klebstoffs, noch weitere Resonanzen auf.

Als Frequenz des Rüttelpiezos ν_{dither} wird im NSOM-Betrieb ein Wert auf der niederfrequenten Flanke der Resonanzfrequenz gewählt:

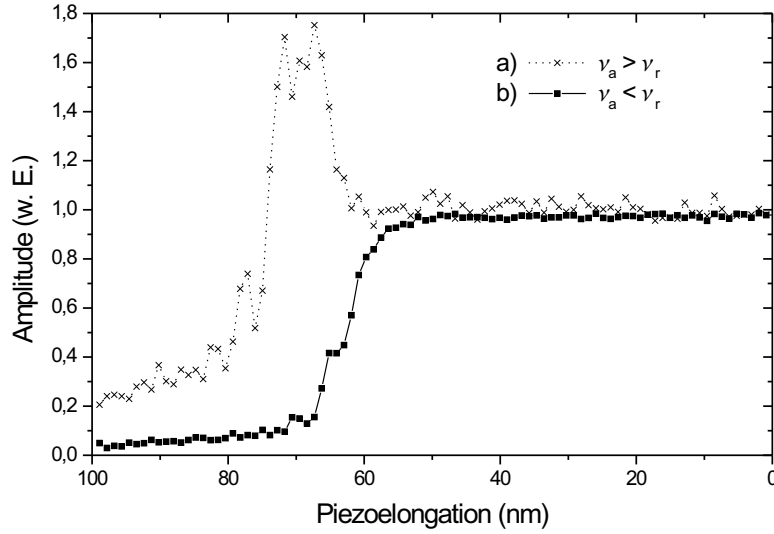


Abbildung 2.15: Signalamplitude des Mikroskopkopfes für feste Anregungsamplitude und Anregungsfrequenzen a) kleiner und b) größer als die Resonanzfrequenz des Mikroskopkopfes in Abhängigkeit von der Elongation des Piezos bzw. des Abstandes zwischen Spitze und Oberfläche. Die Spitze wird an die Oberfläche angenähert. Für eine Piezoelongation größer als 55 nm wechselwirkt die Spitze mit der Oberfläche. Für Piezoelongationen größer als 70 nm ist eine Berührung der Spitze mit der Oberfläche wahrscheinlich.

Für eine Anregungsfrequenz ν_{dither} , die größer als die Resonanzfrequenz ν_r des Mikroskopkopfes ist, kommt es bei einer Annäherung zunächst zu einer Vergrößerung der Signalamplitude aufgrund der Änderung der Resonanzfrequenz im Interaktionsbereich der Oberfläche (Abbildung 2.15). Demgegenüber wird für Anregungsfrequenzen, die kleiner als die Resonanzfrequenz des Mikroskopkopfes sind, bei einer Annäherung in den Interaktionsbereich der Oberfläche sofort eine Verkleinerung der Signalamplitude detektiert. Dieser Effekt wird zur Abstandsregelung genutzt.

Die Wechselwirkung zwischen Glasfaser Spitze und Probenoberfläche lässt sich durch eine erzwungene gedämpfte Schwingung beschreiben:

$$m_e \ddot{x} + F_D + kx = F e^{i\omega t} \quad \text{mit} \quad (2.13)$$

$$F_D = \gamma \dot{x}. \quad (2.14)$$

Hierbei ist m_e die effektive Masse, F_D die Dämpfungskraft, k die Federkonstante, γ die Dämpfung und F die treibende Kraft. F_D besteht aus der inneren Reibung und der Scherkraft F_S zwischen Faserspitze und Oberfläche. Mit einem Lösungsansatz

$$x = x_0 e^{i\omega t} \quad (2.15)$$

folgt aus Gleichung 2.13 für die Amplitude x_0 :

$$F = x_0(k + i\gamma\omega - m_e\omega^2) \quad \text{mit} \quad (2.16)$$

$$x_0 = \frac{F(k - m_e\omega^2 - i\gamma\omega)}{(k - m_e\omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2}. \quad (2.17)$$

Für die Resonanzfrequenz ν_0 gilt:

$$\nu_0 = \frac{\omega_0}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m_e}}. \quad (2.18)$$

Nach K. Karrai und R. D. Grober [118, 119] ergibt sich für die verwendete Stimmgabelgeometrie eine effektive Masse $m_e = 0,2427\rho V$. Hier ist $\rho = 2650 \text{ kg/m}^3$ die Dichte des verwendeten Piezomaterials und V das Volumen der Stimmgabelforke, an welcher die Faserspitze befestigt ist. Für den Betrag der Reibungskraft $F_D = i\omega\gamma x_0 e^{i\omega t}$ an der Stelle $\omega = \omega_0$ mit $Q = \frac{\nu_0}{\Delta\nu} = \frac{\omega_0}{\Delta\omega} = \frac{\omega_0 m_e}{\gamma}$ [55] folgt für die Dämpfungskraft $|F_D|$ nach Gleichung 2.14 und die Resonanzfrequenz ν_0 nach Gleichung 2.18:

$$|F_D| = \frac{k|x_0|}{Q}. \quad (2.19)$$

Für die treibende Kraft F folgt nach Gleichung 2.13:

$$|F| = \frac{k|x_0|}{Q}. \quad (2.20)$$

Bei einer Annäherung der Faserspitze an die Probenoberfläche verkleinert sich der Gütefaktor Q (Gleichung 2.19). Gleichzeitig verkleinert sich der Betrag der Faseramplitude $|x_0|$ (Gleichung 2.20) bei konstanter treibender Kraft $|F|$. Aus den Gleichungen 2.19 und 2.20 folgt direkt: $|F_D| = |F| = \text{konstant}$. Daraus kann geschlossen werden, dass sich mit diesem System keine Rückschlüsse auf die wirkenden Kräfte ziehen lassen. Dies ist allerdings nicht der Fall: Befindet sich die Spitze nicht im Nahfeld der Oberfläche, wirkt lediglich die nominelle Dämpfungskraft $F_{D0} = F$ des Messkopfes. Im Nahfeld hingegen kommt noch die Scherkraft F_S hinzu: $F = F_D + F_S$. Daraus folgt für die Scherkraft:

$$F_S = F_{D0} - F_D = F_{D0}(1 - F_D/F_{D0}) . \quad (2.21)$$

Der Unterschied zwischen F_{D0} und F_D liegt in der abnehmenden Amplitude bei Annäherung der Spitze an die Oberfläche begründet. Die Amplitude $|x_0|$ ist proportional zu der am Piezo detektierten Spannung U :

$$F_D/F_{D0} = U/U_0 \quad (2.22)$$

und es folgt für die Scherkraft:

$$F_S = (1 - U/U_0)kx_0 \quad . \quad (2.23)$$

Zur Bestimmung der Dämpfungskraft F_D müssen die Federkonstante k , die Amplitude $|x_0|$ und die Güte Q bekannt sein. Die Größe von k kann nach Gleichung 2.18 für die Stimmgabelforke direkt berechnet werden: $k = m_e \omega_0^2$. Oftmals ist eine Bestimmung der effektiven Masse nicht möglich, so dass k experimentell bestimmt werden muß [124]. Die Güte Q wird direkt aus der Auswertung einer Dispersionskurve gewonnen. Die Amplitude $|x_0|$ der Spitze bei detektiertem piezoelektrischen Signal U_0 kann mit einem Normaski-Interferometer [118] oder für große Amplituden mit einem Lichtmikroskop vermessen und so auf das Verhalten bei kleinen Amplituden rückgeschlossen werden. Bei beiden Messmethoden ist ein großer Fehler bei der Extrapolation auf kleine Amplituden vor allem durch das Verstärkerrauschen für Anregungs- und Detektionspiezo (Abschnitt 2.6.1) zu erwarten. Daher wird die Spitzenamplitude zunächst über die Piezoparameter abgeschätzt und dieser Wert mit Kalibrierproben (Abschnitt 2.7 und Abschnitt 2.8) verifiziert. Zusätzlich werden die Sondenaperturen nach ihrem Einsatz im Nahfeldmikroskop überprüft.

Die Piezospannung U bzw. U_0 wird über Lock-In-Technik bestimmt (normierte Darstellung in Abbildung 2.15b). Für einen stabilen Betrieb ergibt sich für das eingesetzte System eine minimale Anregungsamplitude bei einer am Rüttelpiezo anliegenden Spannung von $U_{\text{dither}} = 10 \text{ mV}$. Daraus resultiert eine am Piezo gemessene Spannungsamplitude von $U_{\text{Piezo},0} = 10 \text{ } \mu\text{V}$. Das Verhältnis U_0/x_0 wird über die Piezogabelparameter abgeschätzt [119]:

$$\frac{U_0}{x_0} = \frac{3}{4} \frac{d_{11}}{\epsilon_0} E \cdot \left(\frac{T}{L} \right)^2 \quad (2.24)$$

Dabei ist d_{11} der piezoelektrische Kopplungsfaktor, ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante, E ist das Elastizitätsmodul, k die Federkonstante sowie L und t die in Abbildung 2.12 dargestellten Abmessungen. Für die in dieser Arbeit verwendeten Piezos gilt $L = 4 \text{ mm}$, $t = 0,6 \text{ mm}$ und $W = 0,37 \text{ mm}$. Damit stimmen sie mit den von K. Karrai und R. D. Grober [118,119] verwendeten Piezos ($L=4 \text{ mm}$, $t=0,6 \text{ mm}$, $W=0,4 \text{ mm}$) in den für die Abschätzung relevanten Parametern im Rahmen der Messgenauigkeit überein. K. Karrai und R. D. Grober geben ein Verhältnis von $U_0/x_0 = 27 \text{ } \mu\text{V/nm}$ bei einer experimentell bestimmten Amplitude $x_0 = 0,35 \text{ nm}$ an. Daraus ergibt sich eine gemessene Spannungsamplitude von $U_0 = 9,45 \text{ } \mu\text{V}$. Aufgrund der ähnlichen Konfiguration und der folgenden Messungen an Kalibrierproben sowie der gemessenen mechanischen Stabilität der Spitzen wird die Sondenamplitude x_0 mit $x_0 < 1 \text{ nm}$ abgeschätzt.

Die auf die Spitze wirkende Scherkraft wird nach Gleichung 2.23 abgeschätzt. Die Federkonstante $k = m_e \omega_0^2$ wird über die Eigenfrequenz des Systems mit Faser, $\nu_0 = 33,630 \text{ kHz}$, und die Dichte $\rho = 2650 \text{ kg/m}^3$ zu $k = 25500 \text{ N/m}$ bestimmt. Wird der Quarz im Frequenzband um die Resonanzfrequenz betrieben, wird die Federkonstante durch die effektive Federkonstante k_0 mit $Q=122$ [119] ersetzt:

$$k_0 = k/(\sqrt{3}Q) = 120,68 \text{ N/m} \quad . \quad (2.25)$$

Mit $Q = 122$ und $x_0 < 1$ nm ergibt sich eine Scherkraft nach Gleichung 2.23:

$$F_S = F_D(1 - U/U_0)kx_0/(\sqrt{3}Q) < 57,1 \cdot (1 - U/U_0) \cdot \text{nN} . \quad (2.26)$$

Wird der aus Faserspitze und Stimmgabel bestehende Mikroskopkopf definiert an eine Oberfläche angenähert, so verkleinert sich die Amplitude und die Resonanzfrequenz vergrößert sich (Abbildung 2.16).

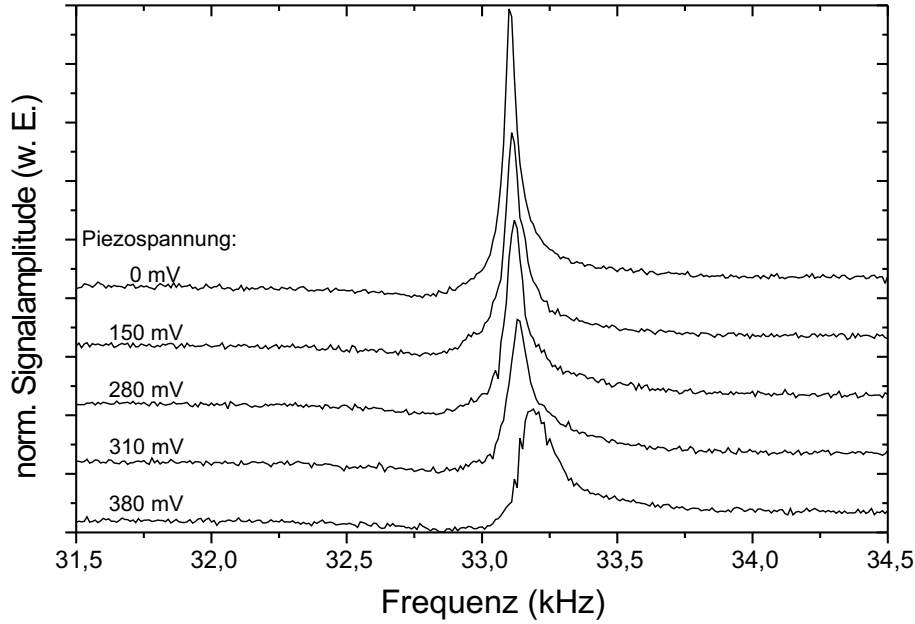


Abbildung 2.16: Signalamplitude des Mikroskopkopfes (Stimmgabel mit Faserspitze) in Abhängigkeit vom Abstand zwischen Faserspitze und Oberfläche. Der Abstand wird über einen Piezostapel variiert, auf dem der Mikroskopkopf fixiert ist. Bei einer Piezostapelspannung $U > 0$ mV wird die Spitze der Oberfläche angenähert und befindet sich im Interaktionsbereich der Oberfläche.

Zur Bestimmung der tatsächlichen Elongation des Piezostapels für definierte Spannungen ist eine Kalibrierung des Piezostapels notwendig (Abschnitt 2.6.3).

Abbildung 2.17 zeigt den direkten Zusammenhang der Signalamplitude und der Resonanzfrequenz in Abhängigkeit von der kalibrierten Piezostapelelongation. Die Verkleinerung der Amplitude und die Vergrößerung der Resonanzfrequenz bei Annäherung des Mikroskopkopfes an die Oberfläche wird für die Abstandskontrolle genutzt¹¹.

Durch die angestrebte hohe Güte bei der Präparation des Piezo-Faser-Systems und den Betrieb im Frequenzband um die Resonanzfrequenz wird die effektive Federkonstante deutlich verkleinert und die Auflösung erhöht.

¹¹Die Vergrößerung der Resonanzfrequenz wird bei einem Noncontact-AFM nicht beobachtet: hier verkleinert sich die Resonanzfrequenz mit wachsender Kraft auf den Cantilever. Dies ist auf die kleineren Federkonstanten der AFM-Cantilever zurückzuführen [55, 119].

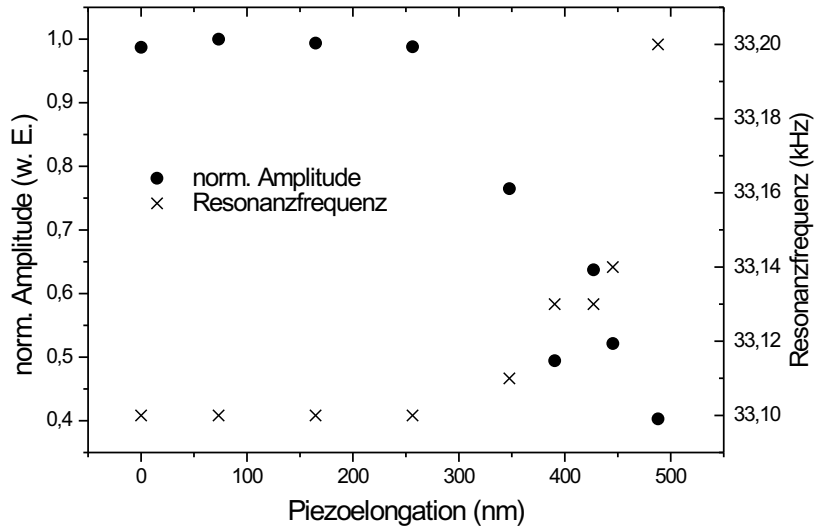


Abbildung 2.17: Normierte Signalamplitude und Resonanzfrequenz des Messkopfes in Abhängigkeit von der Piezoelongation.

Die im Folgenden beschriebene PID-Abstandsregelung benötigt einen sogenannten Arbeitspunkt, auf welche die Regelung einschwinge soll. Dieser Arbeitspunkt wird über die Spannungen U und U_0 vorgewählt. Im Experiment wurde ein stabiler Mikroskopbetrieb bei einem Spannungsverhältnis von 0,75 (siehe auch Abbildung 2.15b) erreicht. Damit ergibt sich eine auf die Faserspitze wirkende Scherkraft von $F_S = 14,3$ nN. Langzeitmessungen des optischen Ausgangssignals und rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen der Spitze ergaben keine Veränderung der Spitzenapertur bzw. der Spitze.

2.6.1 Rasterfrequenz

Die Abstandsregelung erfolgt mit einem Piezoaktuator [106]. Die Auflösung derartiger Piezoaktuatoren wird nicht durch Haft- und Gleitreibung limitiert, sondern wird durch das Positionsrauschen gegeben¹²: Es ergibt sich ein Wert von $\Delta l \approx 0,1$ nm. Das Verstärkerrauschen wird vernachlässigt, da es in einem Frequenzband weit oberhalb der Resonanzfrequenz des mechanischen Systems auftritt. Zusätzlich kann eine Drift des Piezos nach Erreichen der Spannungsänderung auftreten. Dieses Positionskriechen ist eine Funktion der Zeit und beträgt ungefähr 1% pro Zeitdekade [125]. Damit ist der Effekt aufgrund der Geschwindigkeit der Regelung (≈ 270 μ s) vernachlässigbar.

¹²Mit dem Hochspannungsverstärker aufgenommene Signale werden zur Bestimmung des Positionsrauschens analysiert: Es wird der Mittelwert (RMS) gebildet und die Standardabweichung zur Charakterisierung des Rauschens verwendet.

Der Piezoaktuator hat eine Hysterese, welche durch kristalline Polarisierungseffekte und molekulare Reibung hervorgerufen wird [125]: Dabei hängt die absolute Auslenkung eines Piezoaktuators von der angelegten Spannung und von der remanenten Polarisierung ab. Die Polarisierung wiederum ist vom angelegten elektrischen Feld und somit davon abhängig, ob zuvor eine höhere oder eine niedrigere Spannung angelegt war. Da eine Spannungserhöhung/-reduktion eine Erhöhung/Reduktion der remanenten Polarisierung erzeugt, ergibt sich ein positives/negatives Nachziehen des Piezos. Gleichung 2.27 beschreibt die Auslenkung ΔL_{Drift} zur Zeit t in Abhängigkeit von der nach der Zeit τ erzeugten Längenänderung ΔL_τ nach der Spannungsänderung und dem Kriechfaktor¹³ γ :

$$\Delta L_{\text{Drift}} \approx \Delta L_\tau (1 + \gamma \lg(t/\tau)) \quad . \quad (2.27)$$

Im dem elektrisch geladenen Piezoaktuator ist die Energie $E = 1/2 \cdot CU^2$ gespeichert. Somit ist jede Längenänderung mit einem Ladungstransport bzw. mit einem Strom I verbunden:

$$I = \frac{dQ}{dt} = C \frac{dU}{dt} \quad . \quad (2.28)$$

Mit dem verwendeten HV-Verstärker ($I_{\text{max}} = 3,5 \text{ mA}$, [107]) und dem Piezoaktuator ($C = (0,75 \pm 0,15) \mu\text{F}$, [106]) ergibt sich für eine Spannungsänderung $\Delta U = 100 \text{ V}$ eine minimale Zeit $t_{\text{min}} \approx 22 \text{ ms}$, die notwendig ist, um den Piezo um die Länge $\Delta l = l_2 - l_1$ auszudehnen. Hierbei wird die Spannungsänderung mit einer Frequenz weit unterhalb der Resonanzfrequenz durchgeführt (statischer Betrieb).

Die maximale Arbeitsfrequenz eines Piezoaktuators (dynamischer Betrieb) ist abhängig vom maximalen Strom I_{max} des verwendeten Verstärkers und der Spannungsamplitude $U_{\text{peak-peak}}$ und kann über Gleichung 2.29, hergeleitet aus Gleichung 2.28, für eine Dreiecksspannung¹⁴ abgeschätzt werden:

$$f_{\text{max}} \approx \frac{I_{\text{max}}}{2CU_{\text{peak-peak}}} \quad . \quad (2.29)$$

Somit folgt für das verwendete System bei maximaler Amplitude $U_{\text{peak-peak,max}} = 100 \text{ V}$ eine maximale Arbeitsfrequenz $f_{\text{max}} \approx 23,3 \text{ Hz}$. Die Arbeitsfrequenz muss kleiner als die Resonanzfrequenz des Piezoaktuators und größer als die Abtastfrequenz der xy-Verschiebeeinheit sein. Die Resonanzfrequenz des unbelasteten einseitig befestigten Piezoaktuators liegt bei $f_0 = 138 \text{ kHz}$ [106] und reduziert sich aufgrund der Befestigung der Halterung, der Stimmgabel, der Faser und des Anregungspiezos nach folgender Formel [125]:

$$f'_0 = f_0 \sqrt{m_{\text{eff}} / (m_{\text{eff}} + M)} \quad . \quad (2.30)$$

Dabei bezeichnet $m_{\text{eff}} = 1/3 m_{\text{Piezoaktuator}}$ die effektive Masse des Piezoaktuators und M die Masse des Messkopfes. Die Masse des Piezoaktuators beträgt $m_{\text{Piezoaktuator}} = 3,52 \text{ g}$.

¹³Der Kriechfaktor ist abhängig von den Keramikeigenschaften und liegt bei 0,001 bis 0,002 [125].

¹⁴Diese Anregung resultiert in einer dreieckförmigen Auslenkung des Piezoaktuators.

Die Masse der aufgebrachten Komponenten beträgt $M = 0,35$ g. Somit folgt für die Resonanzfrequenz $f'_0 = 121$ kHz¹⁵.

Der Piezoaktuator kann seine nominelle Auslenkung $\Delta l \approx l_{\max}$ in der Zeit $T_{\min} = 1/(3f_0) = 2,60$ μ s erreichen, wobei er stark überschwingt. Für das Gesamtsystem aus Piezoaktuator und Messkopf folgt: $T_{\min} \approx 1/(3f'_0) = 2,75$ μ s. Dies entspricht einer Frequenz $f_{\text{ueber}} = 1/T_{\min} \approx 363,6$ kHz.

Um die Anregung einer Resonanz und ein Überspringen zum Schutz der Faserspitze zu verhindern, sollte die Höhenregelung nicht nur unterhalb der Resonanzfrequenz f'_0 , sondern auch unterhalb der Frequenz f_{ueber} betrieben werden. Die Höhenregelung des Systems arbeitet mit einer Frequenz von $f_{\text{topo}} = (270 \mu\text{s})^{-1} = 3,70$ kHz, welche durch die Prozessorkarte [108] begrenzt wird. Diese Frequenz liegt deutlich unterhalb von beiden Grenzfrequenzen.

Es ist nach Gleichung 2.29 zu beachten, dass innerhalb einer Periode $T_{\text{topo}} = 270$ μ s keine Spannungsänderung $\Delta U(I = 3,5 \text{ mA}, C = 0,75 \mu\text{F}, \Delta t = 270 \mu\text{s}) > 0,63$ V auftritt. Ansonsten erreicht der Piezoaktuator seine vorgesehene neue Ausdehnung $l(U_{\text{alt}} + \Delta U)$ nicht. Liegt eine unbekannte Probe vor, ist demnach zu prüfen, ob Sprünge in der Topographie auftreten, welche eine Piezospannungsänderung $\Delta U > 0,63$ V innerhalb einer Periode T_{topo} erfordern (scharfe Kanten). Die Schrittweite muss also an die Probe angepasst werden. Es ist zu beachten, dass eine Abstandsregelung je nach vorheriger Elongation oftmals einige Perioden T_{topo} benötigt, bis sich zwischen Faser und Oberfläche ein konstanter Abstand eingestellt hat (Abschnitt 2.6.2).

Die mittlere Verweildauer der Spitze pro Rasterpunkt beträgt $t_{\text{punkt}} = 32$ ms bei einer minimalen Schrittweite von $s_{\min} = 100 \mu\text{m}/256^2 = 1,529$ nm [99]. Daraus ergibt sich eine Rasterfrequenz von $f_{\text{scan}} = 31,2$ Hz. Die Rasterfrequenz f_{scan} des xy-Verschiebetisches ist damit deutlich kleiner als die maximale Arbeitsfrequenz f_{\max} (Gleichung 2.29). So ist ein Einschwingen der Faserspitze am aktuellen Messpunkt möglich. Ohne das zerstörungsfreie Einschwingen der Faser könnte kein präziser Elongationswert z des Piezoaktuators für die jeweilige xy-Position auf der Probe gewonnen werden und insbesondere periodische Strukturen würden falsch ausgewertet.

Als mittlere Aufzeichnungsdauer eines 256×256 -Bildes der Größe $3,125 \times 3,125 \mu\text{m}^2$ einer unbekannten Probe ergab sich die Zeit $t_{\text{Bild}} \approx 35$ min.

2.6.2 PID-Regelung

Als Abstandsregelung wurde eine PID-Regelung realisiert, welche auf einer autonomen Prozessorkarte [108] implementiert wurde. So kann die Regelung mit einer konstanten

¹⁵B. M. Hoeling et al. stellen den Einsatz eines bauähnlichen Piezoaktuators, welcher bei einer Resonanzfrequenz betrieben wird, in einem Michelson-Interferometer Aufbau vor [126]. Auch sie messen eine Verschiebung der Resonanzfrequenz f_0 nach Befestigung weiterer Komponenten am Piezo. Zusätzlich konnte nach der Befestigung ein resonantes Anschwingen bei Anregungsfrequenzen neben der Hauptresonanz f_0 ($f_1 < f_0 < f_2$) beobachtet werden. Dieser Effekt trat auch in dieser Arbeit beim Einsatz der Piezostimmgabel als Abstandssensor auf.

Frequenz von 3,7 kHz ($\tau=270 \mu\text{s}$) im Hintergrund erfolgen, während die eigentlichen Verschiebe- und Auswertealgorithmen auf PC-Ebene ablaufen. Grundlage der Regelung ist Gleichung 2.31, welche in [127] hergeleitet wird:

$$U(t) = K_P e(t) + K_I \int_0^t e(\tau) d\tau + K_D \frac{de(t)}{dt} . \quad (2.31)$$

Dabei ist $U(t)$ die Regelausgangsgröße, $e(t)$ die Regelabweichung, K_P der Proportionalparameter, K_I der Integralparameter und K_D der Differentialparameter. Der Einfluss der verschiedenen Parameter K_P , K_I und K_D auf die Amplitude nach einer Störung des Systems (von 0 nach 1) sind in Abbildung 2.18 dargestellt.

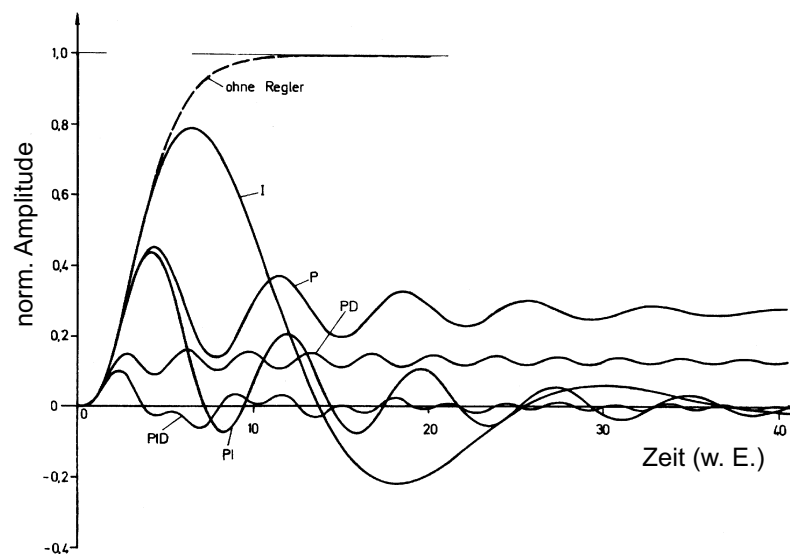


Abbildung 2.18: Normierte Amplitude der Regelausgangsgröße $U(t)$ für die verschiedenen Reglertypen. Die Abbildung ist [127] entnommen und modifiziert.

Die PID-Parameter K_P , K_I und K_D wurden mit dem Schwingungsverfahren von Ziegler und Nichols [127] bestimmt. Dazu wird die Regelung zunächst als reiner P-Regler

Regler	K_P	$T_n = K_P/K_I$	$T_v = K_D/K_P$
P	$K_{P,krit} \cdot 0,50$	-	-
PI	$K_{P,krit} \cdot 0,45$	$T_{krit} \cdot 0,85$	-
PID	$K_{P,krit} \cdot 0,60$	$T_{krit} \cdot 0,50$	$T_{krit} \cdot 0,12$

Tabelle 2.1: Bestimmung der PID-Parameter nach den Auswahlregeln von Ziegler und Nichols [127].

($K_I=K_D=0$) betrieben und K_P vorsichtig erhöht. Das System wird damit an die Stabilitätsgrenze herangefahren. Hierbei ist zu beachten, dass ein Aufschwingen der Regelung

eine Zerstörung der Faserspitze nach sich ziehen kann. Die Periodendauer T_{krit} an der Stabilitätsgrenze wird bestimmt, die Parameter nach den Auswahlregeln von Ziegler und Nichols (Tabelle 2.1) berechnet und ggf. nachjustiert.

Theoretisch müssen die PID-Parameter bei Montage einer neuen Spitze neu bestimmt werden. In der Praxis zeigte sich jedoch, dass dies bei einer guten Reproduktion des Messkopfes nicht nötig ist.

2.6.3 Interferometrische Piezokalibrierung

Der Hersteller des Piezoaktuators (Typ NEC AEO505D08) gibt einen Fehler von über 27% für die Ausdehnung bei einer Arbeitsspannung von 100 V an : $(6,1 \pm 1,5) \mu\text{m}$ [106]. Die notwendige Kalibrierung des Moduls erfolgte mit einem interferometrischen Aufbau. Dazu wurde der verwendete Piezo in einem Phasenschieber (Abbildung 2.19) eingesetzt.

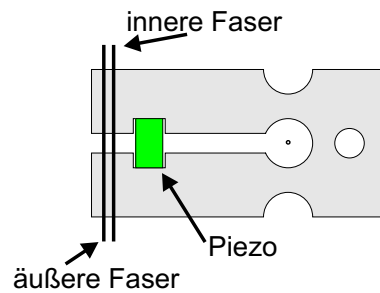


Abbildung 2.19: Der verwendete Phasenschieber besteht aus dem zu untersuchenden Piezo und zwei auf einem Al-Profil fixierten Glasfasern. Aufgrund der unterschiedlichen Abstände des Piezos, der inneren und der äußeren Faser zum Drehpunkt kommt es zu unterschiedlichen Ausdehnungen der inneren bzw. äußeren Faser bei angelegter Piezospannung.

Dieser Phasenschieber besteht aus einem planen Aluminium-U-Profil (Dicke: 2 mm), in welches der zu untersuchende Piezo eingepasst wird. An den Enden des Profils wird eine Glasfaser derart fixiert, dass sie eine Schleife bildet (Abbildung 2.20). Eine Ausdehnung des Piezos bewirkt nun eine Streckung der Faser und somit eine Änderung des optischen Weges.

Ein HeNe-Laser ($\lambda = 632,8 \text{ nm}$) wird derart mit Hilfe eines 50%/50%-Strahlteilers in zwei Glasfasern (3M, Typ FS-SN-3224, Brechungsindex des Faserkerns $n_k = 1,457$ [58]) eingekoppelt, dass ein Teil über einen Faserkoppler auf eine Photodiode (Thorlabs, Typ DET110) trifft, während der zweite Teil über den Phasenschieber in den Faserkoppler eingebracht wird und dann auf die Photodiode trifft. Durch diesen Phasenschieber lässt sich ein interferometrisches Signal in Abhängigkeit von der angelegten Piezospannung an der Photodiode detektieren (Abbildung 2.20).

Aus den Abständen der Interferenzmaxima bzw. -minima und dem mechanischen Aufbau lässt sich die Piezoelongation in Abhängigkeit von der angelegten Spannung bestim-

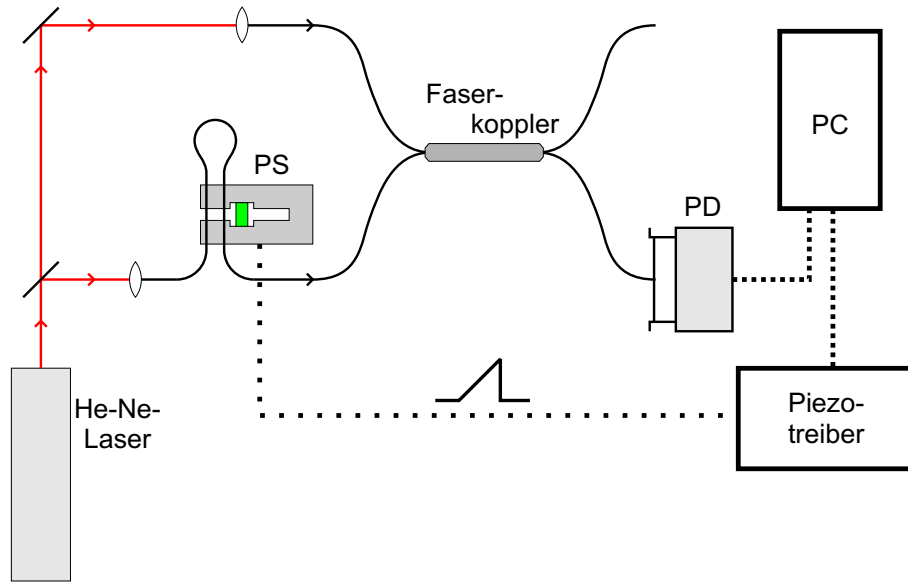


Abbildung 2.20: Interferometrischer Aufbau zur Kalibrierung des in der Höhenregelung eingesetzten Piezostapels (PS: Phasenschieber, bestehend aus einer Glasfaser Schleife und dem zu untersuchenden Piezo; PD: Photodiode; PC: Personal Computer).

men. Dabei wird der optische Weg durch den Brechungsindex $n = 1,457$ der Glasfaser berücksichtigt. Aufgrund des Aufbaus des Phasenschiebers (die einlaufende Faser ist 2 mm dichter am Drehpunkt als die rücklaufende Faser) ergeben sich unterschiedliche Dehnungen für die betroffenen Faserabschnitte. Die äußere Faser hat einen Abstand von 37,5 mm, die innere Faser einen Abstand von 35,5 mm vom Drehpunkt. Der Piezo hat einen Abstand von 28,25 mm vom Drehpunkt. Daraus ergibt sich für die äußere Faser ein Korrekturfaktor von $k_a = 37,5/28,25 = 1,327$ und für die innere Faser ein Korrekturfaktor von $k_i = 35,5/28,25 = 1,257$ gegenüber der tatsächlichen Ausdehnung des Piezos.

Abbildung 2.21 zeigt das resultierende Photodiodensignal in Abhängigkeit von einer angelegten Piezospannungsrampe von $U_{\text{Rampe}} = 20$ V.

An den Piezo wird eine Spannung $U_{\text{start}} = 40$ V angelegt. Die Spannung wird dann um 20 V erhöht (dargestellt durch die schwarze Messdatenkurve) und wieder auf $U_{\text{start}} = U_{\text{end}} = 40$ V erniedrigt (gepunktete Kurve). Dieser Bereich wurde gewählt, da folgende Messungen in einem mittleren Auslenkungsbereich (d.h. $U_{\text{med}} = 50$ V) gestartet werden sollten, um einen maximalen Regelbereich für negative wie positive Ausdehnung zu gewährleisten. Abbildung 2.22 zeigt die Auswertung des in Abbildung 2.21 dargestellten Datensatzes: Für die Abstände $\Delta_{m,m+1}$ von Interferenzminima bzw. -maxima gilt nach obigen Überlegungen: $\Delta_{m,m+1} = 632,8 / (1,457 \cdot (1,327 + 1,257))$ nm = 168,08 nm.

Für die maximale Piezoausdehnung wurde die Messung für den Spannungsbereich $U = 0$ bis 100 V wiederholt (Abbildung 2.23). Es ergibt sich eine Elongation des Piezoaktuators von $z_{\text{max}} = 4,46$ μm bei einer Spannung von 100 V.

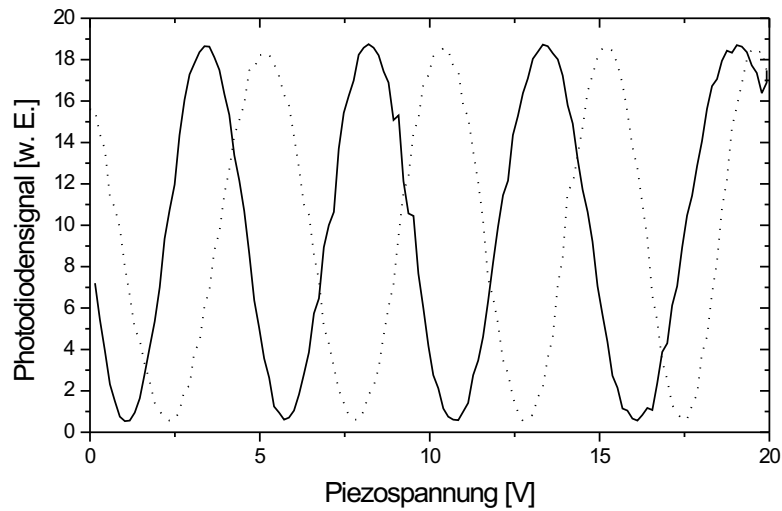


Abbildung 2.21: Interferometrisches Messsignal bei Variation der Piezoelongation. Die zunehmende Ausdehnung ist durch die schwarze Kurve, die abnehmende Ausdehnung durch die gepunktete Kurve dargestellt. Es ist eine Hysterese zu erkennen.

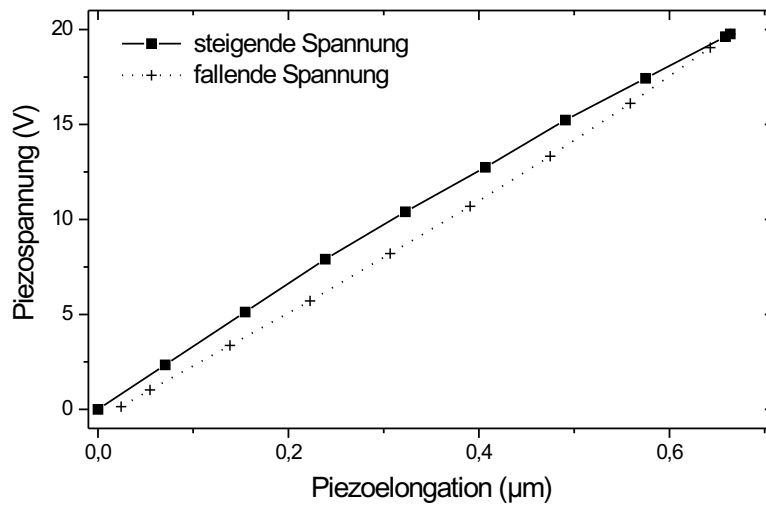


Abbildung 2.22: Hysteresekurve des verwendeten Piezoaktuators im Arbeitsbereich $\Delta U = 40$ bis 60 V. Die Quadrate repräsentieren die Messpunkte für die steigende, die Kreuze die Messpunkte für die fallende Spannung.

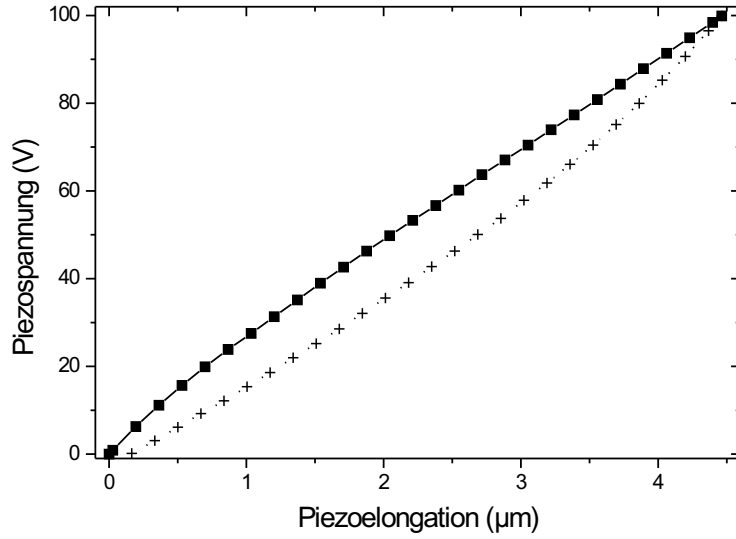


Abbildung 2.23: Hysteresekurve des verwendeten Piezoaktuator bei voller Elongation $\Delta U = 0$ bis 100 V.

In beiden Fällen (Piezospannungsrampe 20 V: Abbildung 2.22; Piezospannungsrampe 100 V: Abbildung 2.23) ist eine Hysterese zu beobachten, welche umso größer ist je größer der durchgestimmte Spannungsbereich ist. Innerhalb der aufgespannten Fläche, welche durch 0 Volt und die maximale Spannung (=100 Volt) eingeschlossen wird, sind sämtliche Piezoelongationen $z(U)$ möglich.

Die resultierende Elongation bei angelegter Spannung wird für den Bereich $U = 40$ V bis 60 V für steigende und fallende Piezospannungen linear abgeschätzt. Dabei bezeichnet A den Ordinatenabschnitt und B die Steigung der Geraden:

$$z(U_{\text{steigend}}) = (U - A)/B = (U - (0,47 \pm 0,20))/(29,55 \pm 0,47) , \quad (2.32)$$

$$z(U_{\text{fallend}}) = (U - A)/B = (U - 0)/(30,49 \pm 0,31) , \quad (2.33)$$

$$z_{\text{med}}(U) = (U - A)/B = (U - (0,22 \pm 0,26))/(30,10 \pm 0,62) . \quad (2.34)$$

$z_{\text{med}}(U)$ bezeichnet die mittlere Elongation bei einer beliebig angelegten Piezospannung im Bereich $U = 40$ V bis 60 V.

Die hier vorgestellte Technik ermöglicht die Kalibrierung des eingesetzten Piezoaktuator. Zusätzlich sollten jedoch mit Hilfe geeigneter, definierter Proben Messungen durchgeführt werden, bevor unbekannte Proben untersucht werden.

2.7 Topographische Auflösung

In diesem Abschnitt wird die mögliche topographische Auflösung an ausgewählten Proben des realisierten optischen Nahfeldmikroskops aufgezeigt.

Die Aufnahme des Rastermikroskops liefert einen oder mehrere dreidimensionale Datensätze, wobei jeweils zwei Dimensionen die Ortskoordinaten der Messgröße darstellen. Dabei bietet sich bei Topographiemessungen eine dreidimensionale Darstellung an. Zusätzlich kann eine Farbskalierung und eine imaginäre Lichtquelle eingesetzt werden (Beispiel: Dreidimensionale Darstellung in Abbildung 2.24).

Diese dreidimensionale Darstellung der Daten ist zwar „sehr anschaulich“, für die Auswertung aber eher hinderlich. Daher werden im Folgenden die Daten zweidimensional und mit einer Farbskala zur Höheninformation versehen¹⁶.

Abbildung 2.24 zeigt die topographische Oberfläche einer in der CD-Produktion eingesetzten metallischen CD-Master-Vorlage. In Abbildung 2.25 ist das in Abbildung 2.24 durch eine schwarze Linie angedeutete Höhenprofil dargestellt.

Die Spezifikationen dieser Probe sind in den Herstellerdatenblättern [128] und weiteren Veröffentlichungen zu finden (z.B. [129]).

Diese Probe wurde danach zur Überprüfung der Höhenkalibrierung (Abschnitt 2.6.3) mit einem Scherkraftmikroskop (AFM, engl.: **A**tomic-**F**orce-**M**icroscope) vermessen (Abbildung 2.26).

Es ergibt sich eine gute Übereinstimmung der gewonnenen Ergebnisse. Zudem stimmen beide Ergebnisse zur Pithöhe ($h_{\text{NSOM}} = (143 \pm 11) \text{ nm}$, $h_{\text{AFM}} = (136,1 \pm 5,1) \text{ nm}$) und der Spurabstand $d_{\text{NSOM}} = (1,6 \pm 0,02) \mu\text{m}$ sehr gut mit den Herstellerspezifikationen von einer typischen Pithöhe $h_{\text{Philips}} = 140 \text{ nm}$ und einem typischen Spurabstand $d_{\text{Philips}} = 1,5$ bis $1,7 \mu\text{m}$ [128] überein.

Zur gleichzeitigen Überprüfung der Höhenkalibrierung und des piezoelektrischen $xy\text{-}100 \times 100 \mu\text{m}^2$ -Verschiebetisches [99] wurde ein goldbedampftes Si-Reliefigitter (Gitterperiode: $10 \mu\text{m}$, Relieftiefe: 200 nm) eingesetzt (Abbildung 2.27).

Messungen an dieser Probe zeigen das bereits in Abschnitt 2.6.1 beschriebene Zusammenspiel zwischen Schrittweite, Scan- und Regelgeschwindigkeit sowie der Sondenform (Abschnitt 2.4): Bei einer Schrittweite von $s_{100} = 390,06 \text{ nm}$ ergibt sich eine mittlere Furchentiefe von $z_{100} = (56 \pm 11) \text{ nm}$ (Abbildung 2.27). Es wurde ein $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ -Ausschnitt und Rohdatensätze gewählt, um das Nachziehen der Regelung zu verdeutlichen. Erst für einen $12,5 \times 12,5 \mu\text{m}^2$ -Scan (Schrittweite: $s_{12,5} = 48,8 \text{ nm}$; rechte Abbildung in 2.27) und höhere Auflösungen ergibt sich eine konstante Furchentiefe von $z_{<12,5} = (202,6 \pm 10) \text{ nm}$. Der Vergleich beider Messungen zeigt ein deutliches Verschmieren der Topographie für

¹⁶Die Auswertung der gewonnenen Bilder erfolgt auf einem Apple Macintosh Computer mit Hilfe einer für die Auswertung von Rasteraufnahmen modifizierten Version der kostenlosen Software 'NIH Image' (entwickelt an der U.S. National Institutes of Health; Bezugsquelle: <http://rsb.info.nih.gov/nih-image/>): 'Image SXM'. Diese modifizierte Software beinhaltet z.B. diverse Kompensationsmöglichkeiten bei einer xy-Verkipfung der Probe.

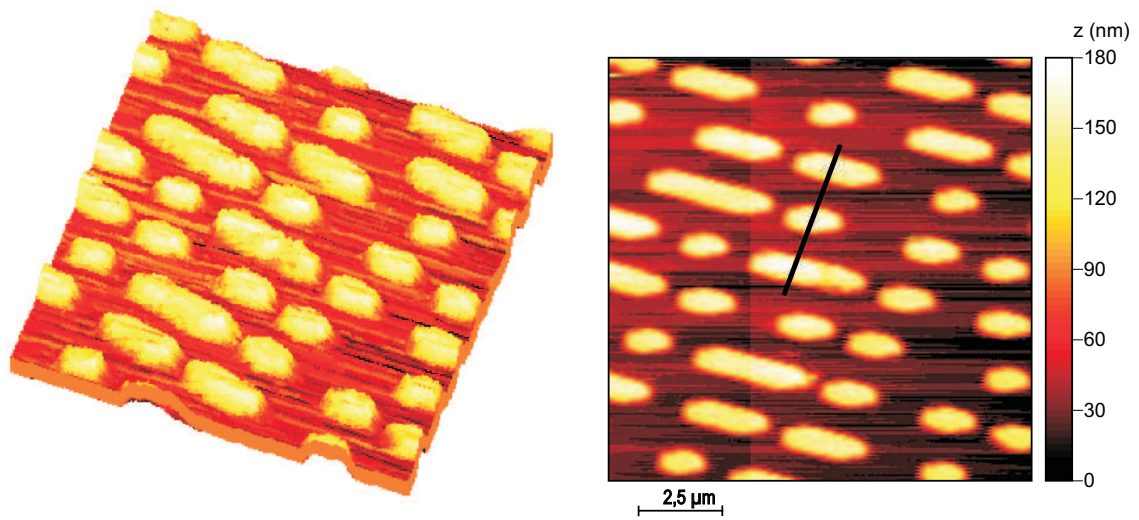


Abbildung 2.24: Nahfeldmikroskopische Tiefenprofilaufnahmen (Größe des Scanbereichs: $12,5 \times 12,5\ \mu\text{m}^2$) der CD-Master-Vorlage in drei- und in zweidimensionaler Darstellung. Dem Datensatz wurde ein Höhenprofil entnommen (In der 2-D Darstellung als schwarze Linie dargestellt.). Es wurde zur Veranschaulichung eine dreidimensionale Darstellung mit imaginärer Beleuchtung und somit resultierendem Schatteneindruck gewählt. Die Kalibrierung der z -Achse erfolgte mit Gleichung 2.34. Es ergibt sich eine Pithöhe von $h_{\text{NSOM}} = (143 \pm 11)\ \text{nm}$.

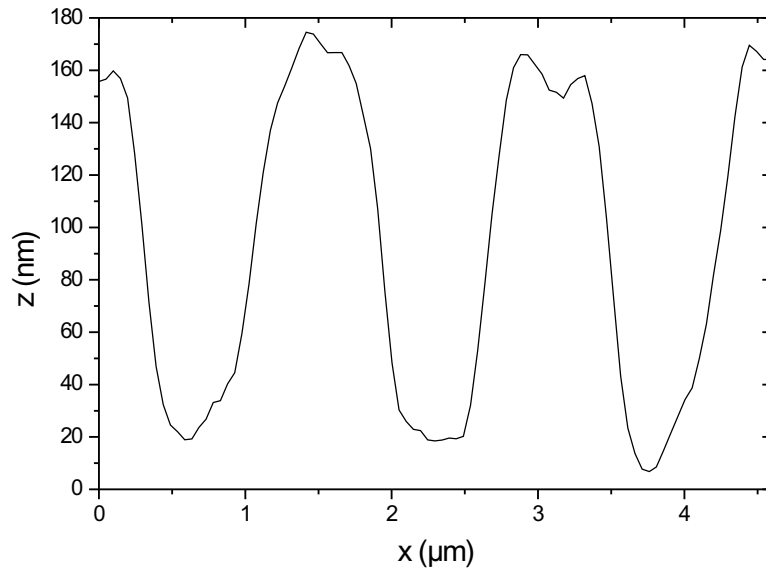


Abbildung 2.25: Höhenprofil des in Abbildung 2.24 durch eine schwarze Linie markierten Bereichs. Es ergibt sich eine Pithöhe von $h_{\text{NSOM}} = (143 \pm 11) \text{ nm}$ und ein Spurabstand von $d = (1,6 \pm 0,02) \mu\text{m}$.

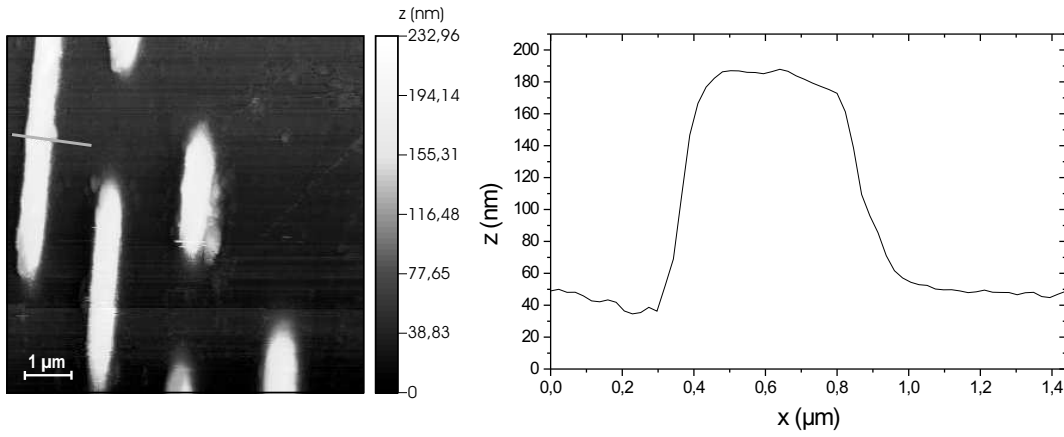


Abbildung 2.26: Scherkraftmikroskopische Aufnahme (AFM, Größe des Scanbereichs: $4 \times 4 \mu\text{m}^2$) der CD-Master Vorlage sowie ein topographisches Profil (in der AFM-Aufnahme als graue Linie dargestellt). Es ergibt sich eine mittlere Pithöhe $h_{\text{AFM}} = (136,1 \pm 5,1) \text{ nm}$.

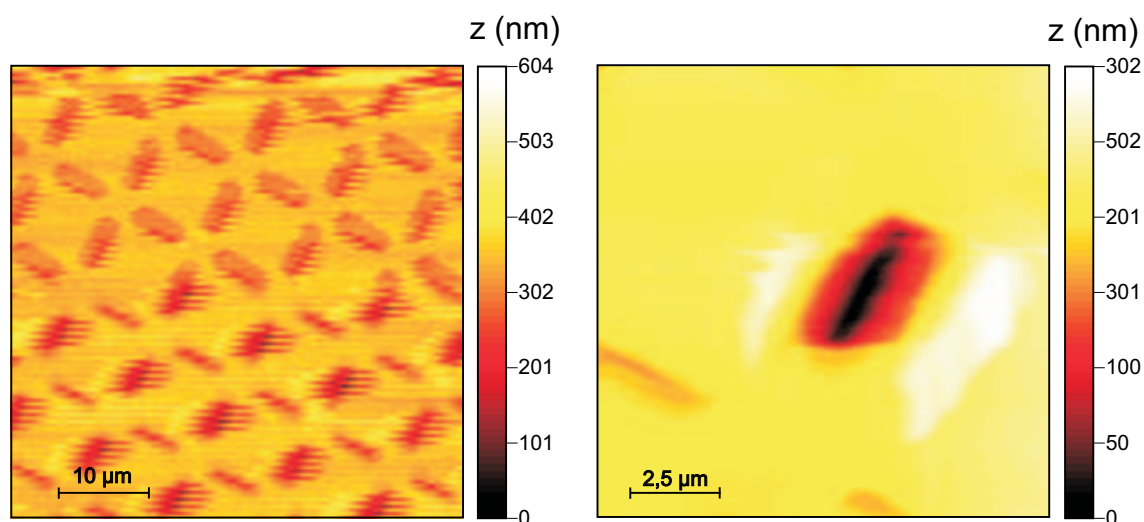


Abbildung 2.27: Nahfeldmikroskopische Tiefenprofilaufnahmen eines goldbedampften Si-Reliefgitters. Die Größe des Scanbereichs in der linken Abbildung beträgt $100 \times 100 \mu\text{m}^2$. Es ist ein Ausschnitt von $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ Größe dargestellt. Die rechte Abbildung zeigt einen $12,5 \times 12,5 \mu\text{m}^2$ großen Scan.

zu groß gewählte Schrittweiten. Diese symmetrische Probe erwies sich als hilfreich für Funktionstests der Verschiebeeinheit bzw. der dazugehörigen Ansteuereinheit.

Beide Proben zeigen, dass die realisierte Abstandsregelung sowohl für scharfe Höhen- als auch Tiefenprofile bei ausreichend kleiner Schrittweite einsetzbar ist.

Eine Aussage zur lateralen Auflösung des optischen Nahfeldmikroskops lässt sich über eine in Abbildung 2.28 dargestellte Stufenkante treffen [29, 130]: Eine idealerweise stufenartige Kante wird mit der Apparatfunktion gefaltet und so verbreitert. Ist das Messsignal nicht stufenartig, wird die Auflösung um die entsprechende laterale Größe verbreitert. An einer stufenartigen Kante wird die Differenz $x_2(f_2 = 90\%) - x_1(f_1 = 10\%)$ als Auflösung bezeichnet.

Die Schwierigkeit besteht darin, eine derartige optische Stufenkante an einer ebenen Probe zu realisieren. Daher wurde eine Probe erstellt, welche eine möglichst kleine topographische und große optische Kante aufweist.

2.8 Optische Auflösung

Zur Abschätzung der optischen Auflösung im Durchlichtbetrieb wurde auf einem Glasplättchen ein Wolfram-Drahtgitter plan fixiert und mit Silber (Schichtdicke $d = 20 \text{ nm}$) bedampft. Danach wurde das Gitter vorsichtig entfernt.

In Abbildung 2.29 ist das topographische und optische Signal der resultierenden quadratischen Silberinseln des im Durchlichtmodus betriebenen Nahfeldmikroskops dargestellt.

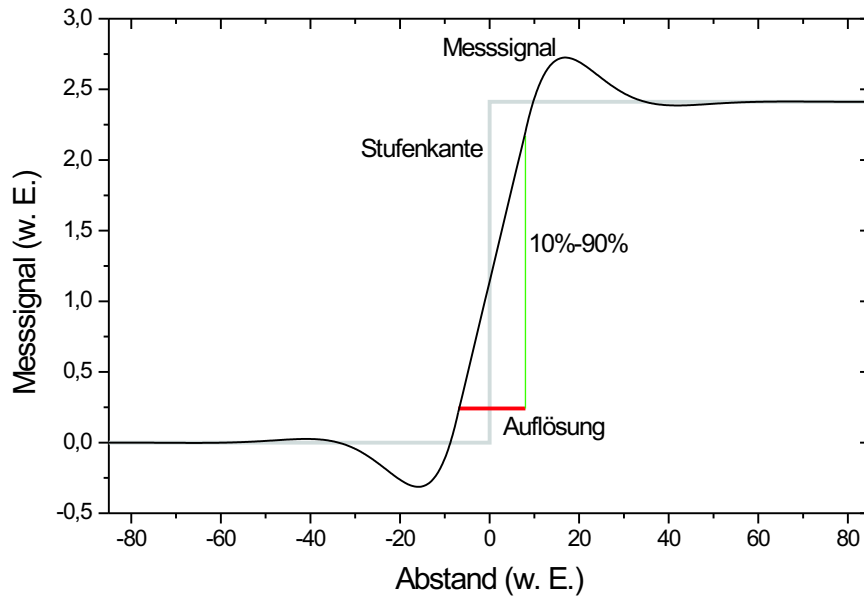


Abbildung 2.28: Schematische Darstellung zur Definition der Auflösung anhand einer Stufenkante. Das Messsignal (schwarz) reagiert auf die Stufenkante (grau). Als Auflösung wird die Differenz $x_2(f_2 = 90\%) - x_1(f_1 = 10\%)$ bezeichnet.

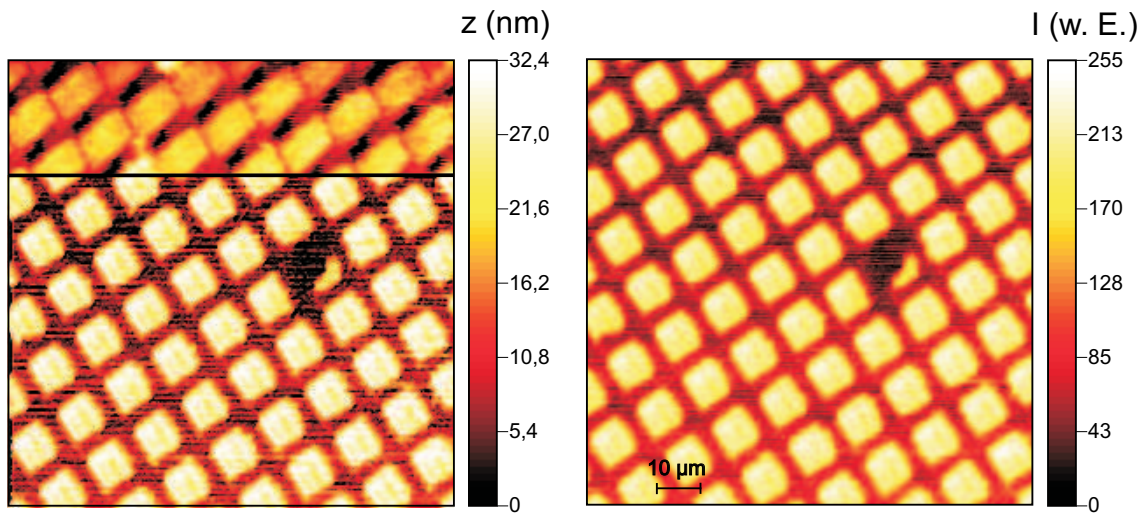


Abbildung 2.29: Durchlichtmessung der quadratischen Silberinseln: Die linke Abbildung zeigt im oberen Teil das topographische Phasensignal. Im unteren Teil ist das Amplitudensignal der Topographie dargestellt. Die Höhenskalierung des topographischen Signals gilt nur für das Amplitudensignal. Die rechte Abbildung zeigt das über einen Photomultiplier detektierte optische Signal. Die Störung in der Oberfläche entstand beim Entfernen des Drahtgitters.

Als topographisches Signal ist hier beispielhaft im oberen Teil des Bildes das Phasensignal der Topographie dargestellt. Mit Hilfe des Phasensignals können je nach Antwortverhalten Kanten besser aufgelöst werden. Das Amplitudensignal wird zur Auswertung der Topographie benutzt. Zur Auswertung der Auflösung wurden Scans mit kleinerer Schrittweite ($3,125 \times 3,125 \mu\text{m}$; Schrittweite $s_{3,125} = 12,2 \text{ nm}$) eingesetzt.

Die nahfeldmikroskopischen Bilder entstehen durch Rasterung der Oberfläche von links nach rechts und umgekehrt. Eine Zerlegung der Datensätze nach Rasterrichtung links-rechts und rechts-links für den topographischen und den optischen Datensatz und die Bildung der Differenz zwischen topographischem und optischem Datensatz gleicher Rasterrichtung kann einen Versatz δx zwischen optischem und topographischem Bild ergeben. Dieser entsteht durch kleine Erhöhungen der Beschichtung im Bereich der Apertur: Das topographische Signal entsteht durch die Wechselwirkung zwischen dieser Erhöhung und der Oberfläche. Liegt die Erhöhung in Rasterrichtung „vor“ der eigentlichen Apertur wird das zugehörige optische Signal erst später detektiert. Liegt die Erhöhung „hinter“ der Apertur wird das zugehörige optische Signal bereits früher detektiert. Um derartige Artefakte auszuschließen, ist es möglich, die x- und y-Rasterrichtung des optischen Nahfeldmikroskops zu vertauschen. Bei der vergleichenden Auswertung von Höhen- und Intensitätsprofilen ist daher zu beachten, dass die extrahierten Profile der gleichen Rasterzeile entnommen werden.

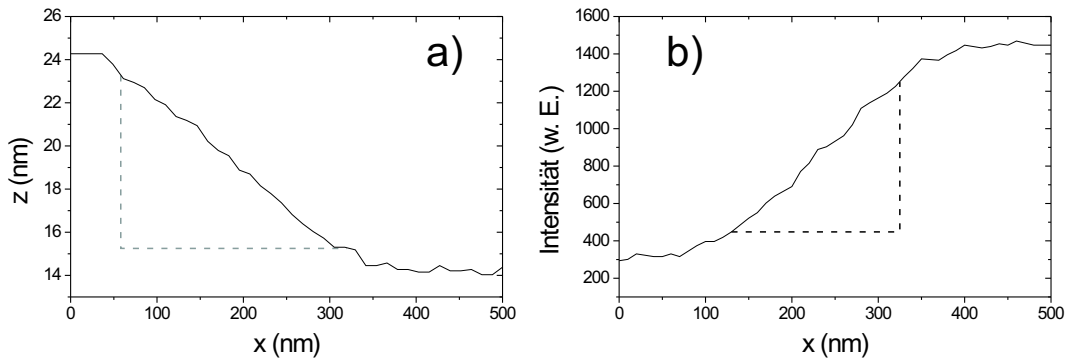


Abbildung 2.30: Auswertung a) der topographischen Stufenkante und b) der optischen Stufenkante.

Das topographische und das optische Profil der Kante sind in Abbildung 2.30a bzw. 2.30b dargestellt. Es ergibt sich eine mittlere Höhe der Silberinseln von $h_{\text{Ag}} = (19 \pm 3) \text{ nm}$, eine laterale topographische Auflösung von $\Delta x_{\text{topo}} = 244 \text{ nm}$ und eine laterale optische Auflösung von $\Delta x_{\text{opto}} = 195 \text{ nm}$. Die laterale topographische und optische Auflösung weicht um einen Faktor ungefähr 2 von typischen Werten (z.B. [118]) ab. Dies ist auf die nicht ideale Probe zurückzuführen. So können sich aufgrund des nicht scharfkantigen Gitters keine idealen Kanten ausbilden.

Das in der schematischen Darstellung der lateralen Auflösung (Abbildung 2.28) darge-

stellte Überschwingen des Messsignals an der Stufenkante wird nicht beobachtet und die Spitze nicht beschädigt.

Untersuchungen mit diesem optischen Nahfeldmikroskop werden an transienten lichtinduzierten Gittern durchgeführt. Dazu wird deren Entstehung und Wirkungsweise im folgenden Kapitel erläutert. Nahfeldmikroskopische Untersuchungen an diesen optischen Gitter ermöglichen die Detektion bekannter optischer Strukturen, welche nicht gleichzeitig an topographische Strukturen geknüpft sind. Durch diese Messungen wird die laterale optische Auflösung des optischen Nahfeldmikroskops in Bereichen ohne topographische Störungen zu $\Delta x_{\text{opto}} < 100 \text{ nm}$ bestimmt (Abschnitt 3.4.1).

3 Ortsaufgelöste Detektion transienter lichtinduzierter Gitter

Das vorgestellte optische Nahfeldmikroskop wird zur Untersuchung des evaneszenten Anteils lichtinduzierter Gitter in laserfarbstoffdotierten Festkörperschichten eingesetzt. In diesem Abschnitt wird zunächst die Entstehung von Interferenz und ihr Einfluss auf die beleuchtete Materie sowie der Einsatz lichtinduzierter transienter Gitter in klassischen Farbstofflasersystemen vorgestellt. Es werden nahfeldmikroskopische Messungen des evaneszenten Feldes an lichtinduzierten Gittern diskutiert und die Entstehung und mögliche Detektion erläutert. Abschließend wird das optische Auflösungsvermögen des Nahfeldmikroskops mit Hilfe des evaneszenten Anteils eines transienten optischen Gitters bestimmt.

3.1 Interferenz

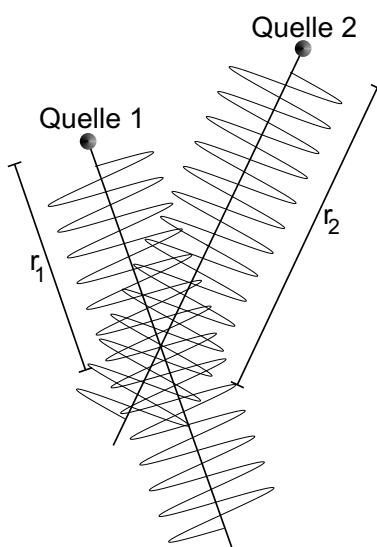


Abbildung 3.1: Zwei kohärente Wellenzüge interferieren in ihrem Überlappungsbereich.

Erste Messungen von Interferenzeffekten wurden 1801 durch T. Young durchgeführt, der Beugungsmuster am Doppelspalt untersuchte. Interferenz kann prinzipiell zwischen zwei Wellen beobachtet werden, welche einen von Null verschiedenen Grad gegenseitiger Kohärenz haben. Dabei können die Wellen auch von verschiedenen Quellen emittiert werden (Abbildung 3.1). Die Interferenz zweier Wellenzüge der Quellen 1 (Amplitude \vec{A}_1 , Intensität I_1) und 2 (Amplitude \vec{A}_2 , Intensität I_2) erzeugt ein räumlich moduliertes Lichtfeld: ein Interferenzgitter.

Interferenzphänomene werden in zahlreichen interferometrischen messtechnischen Applikationen, wie z.B. zur räumlichen Messung, Frequenzbestimmung oder in der Erzeugung fester oder transienter optischer Gitter [25, 26], genutzt.

3.1.1 Theoretisches Modell

Die Entstehung eines optischen Gitters durch die Interferenz zweier Lichtwellen ist in Abbildung 3.2 dargestellt.

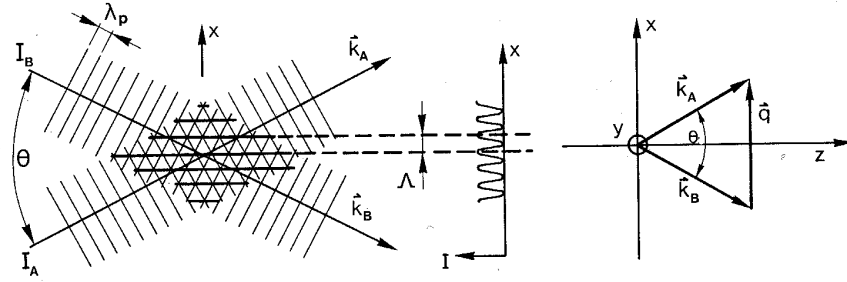


Abbildung 3.2: Die Abbildung zeigt die Entstehung eines Gitters durch die Interferenz zweier Lichtwellen. $I_1 = I_A$ und $I_2 = I_B$ bezeichnen die Intensitäten und $k_1 = k_A$ und $k_2 = k_B$ die Wellenvektoren. Die Abbildung ist [131] entnommen.

Die Wellenvektoren \vec{k}_1 und \vec{k}_2 schließen den Winkel θ ein und bilden den Gittervektor \vec{q} :

$$\vec{q} = \pm(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) .$$

Für die Gitterperiode Λ gilt dann:

$$\Lambda = \frac{2\pi}{q} = \frac{\lambda_p}{2 n \sin(\theta/2)} \quad \text{mit } q = |\vec{q}| . \quad (3.1)$$

λ_p ist die Pumpwellenlänge im Medium mit dem Brechungsindex n .

Für die Intensitätsverteilung I ergibt sich nach Superposition der beiden elektrischen Felder \vec{E}_1 und \vec{E}_2 :

$$\vec{E}_1 = \vec{A}_1 \cos \left(2\pi \left(\frac{t}{T} - \frac{r_1}{\lambda_p} - \phi_1 \right) \right) , \quad (3.2)$$

$$\vec{E}_2 = \vec{A}_2 \cos \left(2\pi \left(\frac{t}{T} - \frac{r_2}{\lambda_p} - \phi_2 \right) \right) , \quad (3.3)$$

$$I = (\vec{E}_1 + \vec{E}_2)(\vec{E}_1 + \vec{E}_2)^* \quad (3.4)$$

$$= \frac{nc\epsilon_0}{2} \left[|\vec{A}_1|^2 + |\vec{A}_2|^2 + 2\vec{A}_1 \cdot \vec{A}_2^* \cos \left\{ 2\pi \left(\frac{r_2 - r_1}{\lambda_p} + \phi_2 - \phi_1 \right) \right\} \right] . \quad (3.5)$$

Dabei bezeichnet $T = 1/\nu = \lambda_p / c$ die Periodendauer. Der Term

$$\Delta I = \frac{nc\epsilon_0}{2} \vec{A}_1 \cdot \vec{A}_2^* \quad (3.6)$$

gibt die Amplitude der Intensitätsmodulation an. ΔI hat in dieser Form nur Gültigkeit, wenn sowohl das Material als auch der Interaktionsmechanismus isotropen Charakter zeigen. Im anisotropen Fall können Gitter auch für $\vec{A}_1 \perp \vec{A}_2$ bzw. $\Delta I = 0$ induziert werden. Um diese Fälle mit einzuschließen, wird der Interferenztensor ΔM verwendet, wobei \vec{A}_1 und \vec{A}_2 ebenfalls zu Tensoren werden:

$$\Delta M_{ij} = \frac{nc\epsilon_0}{2} \vec{A}_{1,i} \cdot \vec{A}_{2,j}^* \quad \text{mit} \quad \Delta I = |\text{Spur}(\Delta M)|. \quad (3.7)$$

Für die in dieser Arbeit (siehe Abschnitt 5.3) verwendete Konfiguration $\vec{A}_1 \parallel \vec{A}_2 \parallel \vec{e}_y$ hat der Interferenztensor ΔM folgende Form:

$$\Delta M = \frac{nc\epsilon_0}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \vec{A}_{1,y} \vec{A}_{2,y}^* & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{I_1 I_2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (3.8)$$

und Gleichung 3.5 vereinfacht sich zu:

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos \left\{ 2\pi \left(\frac{r_2 - r_1}{\lambda_p} + \phi_2 - \phi_1 \right) \right\}. \quad (3.9)$$

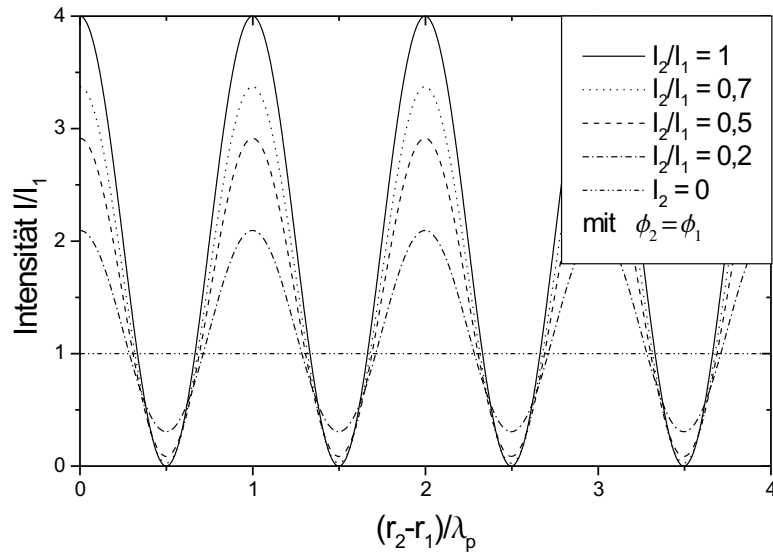


Abbildung 3.3: Verteilung der Intensität I für verschiedene Intensitätsverhältnisse I_2/I_1 für $\vec{A}_1 \parallel \vec{A}_2 \parallel \vec{e}_y$.

Abbildung 3.3 zeigt die dazugehörige Verteilung der Intensität für verschiedene Intensitätsverhältnisse I_2/I_1 . Für den Fall $I_1 = I_2$ ist die Intensität voll moduliert und für den Maximalwert gilt: $(I/I_1)_{\max} = 4$.

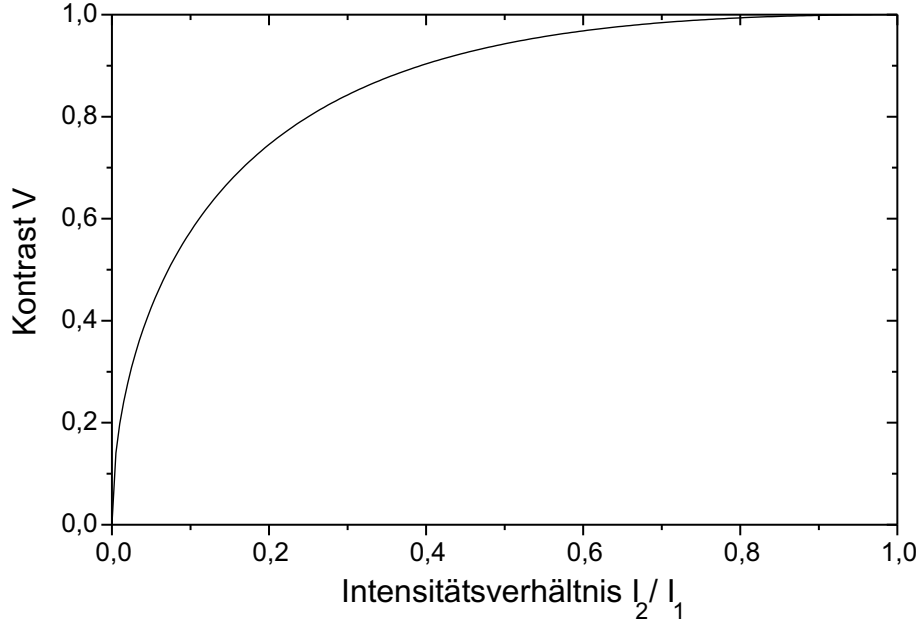


Abbildung 3.4: Theoretisches Kontrastverhältnis $V=(I_{\max}-I_{\min})/(I_{\max}+I_{\min})$ zweier interferierender Wellenzüge in Abhängigkeit vom Verhältnis I_2/I_1 der Intensitäten der einfallenden Wellen (vgl. Abbildung 3.3).

In Abbildung 3.4 ist das Kontrastverhältnis

$$V = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} \quad \text{mit} \quad (3.10)$$

$$I_{\max} = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \quad \text{und} \quad (3.11)$$

$$I_{\min} = I_1 + I_2 - 2\sqrt{I_1 I_2} \quad (3.12)$$

zweier interferierender Wellenzüge in der Konfiguration $\vec{A}_1 \parallel \vec{A}_2 \parallel \vec{e}_y$ dargestellt. Das Kontrastverhältnis V ergibt sich aus den Gleichungen 3.9 und 3.10 zu

$$V = 2 \frac{\sqrt{I_1 I_2}}{I_1 + I_2} . \quad (3.13)$$

Als Funktion des Verhältnisses der einfallenden Intensitäten ergibt sich

$$V\left(\frac{I_2}{I_1}\right) = 2 \frac{\sqrt{\frac{I_2}{I_1}}}{1 + \frac{I_2}{I_1}} . \quad (3.14)$$

3.1.1.1 Räumliches Verhalten

Bei der Überlagerung zweier Wellenzüge, deren laterale Ausdehnung klein im Vergleich zu dem Interaktionsbereich ist, z.B. bei zwei stark fokussierten TEM₀₀-Laserstrahlen,

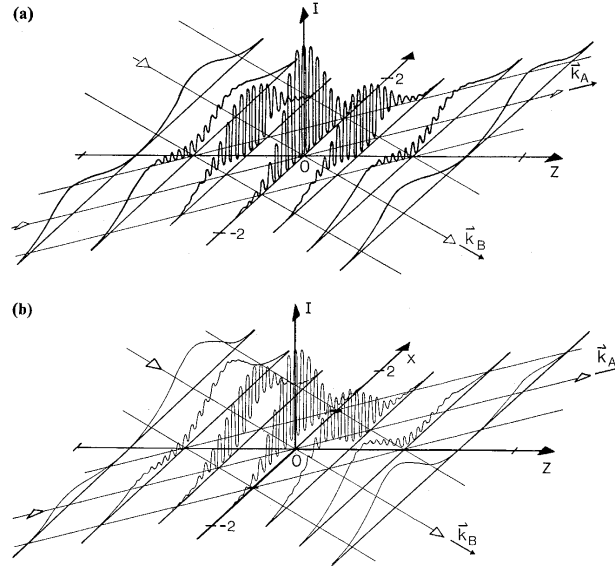


Abbildung 3.5: Verteilung der Intensität I für verschiedene Intensitätsverhältnisse I_2/I_1 für $\vec{A}_1 \parallel \vec{A}_2 \parallel \vec{e}_y$: a) $I_{A=1} = I_{B=2}$, b) $I_{A=1} = I_{B=2}/4$. Die räumlichen Ausdehnungen der Intensitätsverteilungen der eingestrahelten Wellenzüge sind im Gegensatz zu Abbildung 3.3 klein im Vergleich zum Interaktionsbereich. Die Grafik ist [132] entnommen und modifiziert.

liegt die in Abbildung 3.3 dargestellte Intensitätsverteilung so nicht mehr vor. Vielmehr muss der vernachlässigte Randbereich der Wellenzüge in die Betrachtung mit einbezogen werden. Eine quantitative Beschreibung der in Abbildung 3.5 dargestellten Intensitätsverteilung erfolgte durch D. B. Brayton [132] und A. E. Siegman [133], welche die Erfüllung folgender Randbedingungen für die Entstehung eines idealen Gitters fordern:

1. Die Breite b des Interaktionsbereichs muss groß gegenüber der Gitterperiode q nach Gleichung 3.1 sein: $b \cdot q \gg 1$.
2. Die Strecke l , auf der die Strahlen in Ausbreitungsrichtung interferieren, muss groß gegenüber der gewünschten Gitterdicke d (z.B. Dicke der verwendeten Probe) sein: $l/d \gg 1$.
3. Der Absorptionskoeffizient α und/oder die Schichtdicke d des durchleuchteten Mediums muss vernachlässigbar klein sein: $\alpha \cdot d \ll 1$.

3.1.1.2 Zeitliches Verhalten

Bei der Überlagerung zweier Pulszüge mit den Intensitäten $I_1(t)$ und $I_2(t)$, der Halbwertsbreite τ_p , den Spitzenintensitäten $I_{1,\text{peak}}$ und $I_{2,\text{peak}}$ und der zeitlichen Verzögerung τ_d

$$I_{1,2}(t) = nc\epsilon_0 |\vec{A}_{1,2,\text{peak}}|^2 e^{-\{(t \pm \tau_d/2)/\tau_p\}^2}$$

$$= I_{1,2,\text{peak}} e^{-\{(t \pm \tau_d/2)/\tau_p\}^2}$$

ergibt sich für den Interferenztensor ΔM :

$$\Delta M_{ij} = \frac{n c \epsilon_0}{2} \vec{A}_{1,i} \cdot \vec{A}_{2,j}^* e^{-(\tau_d/2\tau_p)^2} e^{-(t/\tau_p)^2}.$$

Demnach zeigen die Elemente des Interferenzensors ein ähnliches zeitliches Verhalten wie die eingestrahnten Pulse. Sie sind außerdem abhängig von der zeitlichen Lage der interferierenden Pulszüge.

3.2 Lichtinduzierte Gitter

Liegt der Interaktionsbereich zweier interferierender Lichtwellen innerhalb eines Materials, so werden sowohl der Brechungsindex¹ $n(\lambda)$ als auch der Absorptionskoeffizient $\alpha(\lambda)$ des Materials räumlich moduliert: Der Brechungsindex $n(\lambda)$ und der Absorptionskoeffizient $\alpha(\lambda)$ eines Materials sind über die Kramers-Krönig-Relationen (siehe dazu auch Anhang 9.1) miteinander verknüpft und werden im komplexen Brechungsindex

$$\tilde{n} = n(1 - i\kappa) \quad (3.15)$$

zusammengefasst. Dabei bezeichnet κ den Absorptionsindex und es gilt:

$$n\kappa = \frac{\alpha\lambda}{4\pi} \quad \text{bzw.} \quad (3.16)$$

$$\alpha = \frac{4\pi n\kappa}{\lambda}. \quad (3.17)$$

Bei der Absorption von Licht werden höhere elektronische Zustände bevölkert, so dass sich im Bereich von Interferenzstreifen ein Populationsdichtegitter ausbildet. Während der Relaxation dieses Gitters können verschiedene niederenergetische Elektronenzustände bevölkert werden, welche wiederum ein Gitter darstellen. Insbesondere können sich in diesem Zusammenhang Raumladungsgitter ausbilden, wie z.B. bei photorefraktiven Materialien [1, 131, 134]. Aufgrund der thermischen Anregung bildet sich zeitlich verzögert ein thermisches Gitter aus, welches zusätzlich Dichteänderungen hervorruft. Eine Kombination dieser Effekte kann auch ein Konzentrationsgitter erzeugen. Alle vorgestellten Anregungen haben Einfluß auf den Brechungsindex n bzw. den Absorptionskoeffizienten α , d.h. sie alle bilden optische Gitter. Zur Ausbildung optischer Gitter sind Laserquellen aufgrund ihrer hohen Kohärenz, der guten Strahlform, der hohen Intensität, der Durchstimmbarkeit der Wellenlänge und der möglichen Emission kurzer Pulse, besonders gut geeignet.

Je nach Wahl der Anregung und Beschaffenheit des Materials können permanente oder dynamische Gitter [131] induziert werden. Dynamische Gitter haben den Vorteil, dass sie eine Variation der Interferenzstruktur und somit z.B. das Verstärken der Ausgangswellenlänge eines DFB-Farbstofflaser ermöglichen. Derartige Laser werden in Abschnitt 4 vorgestellt.

¹ $\lambda = 2\pi c/\omega$ beschreibt die Vakuumwellenlänge.

3.2.1 Populationsdichtegitter

Als Modell zur Beschreibung eines Populationsdichtegitters dient ein klassisches Zwei-Niveau-System. Das Modell gilt ebenso für ein Drei- bzw. Mehr-Niveau-System, in dem nur zwei Niveaus stark bevölkert sind [131]. Für den Absorptionskoeffizienten α eines solchen Systems gilt:

$$\alpha = \sigma_0 N_0 + \sigma_1 N_1 . \quad (3.18)$$

Dabei bezeichnet σ_i den Wirkungsquerschnitt für den Übergang aus dem Niveau i und N_i die Teilchendichte im jeweiligen Niveau i mit $i = 0$ bzw. 1 . Eine optische Anregung des Systems bewirkt eine Änderung der Teilchendichte ($N_0 \rightarrow N_0 - \Delta N$ bzw. $N_1 \rightarrow N_1 + \Delta N$). Dadurch ergibt sich eine Änderung des Absorptionskoeffizienten von

$$\Delta\alpha = -\sigma_0 \Delta N + \sigma_1 \Delta N . \quad (3.19)$$

Erfolgt die Anregung durch einen Laserpuls der Energie W_p und der Frequenz ν_p , der kürzer als die Lebensdauer des angeregten Zustandes ist (beispielsweise die Fluoreszenzlebensdauer des ersten angeregten Singulettzustandes τ_f), kann die Änderung der Teilchendichte durch folgende Gleichung beschrieben werden [131, 135]:

$$\Delta N = N_0 \left(1 - e^{-\frac{\sigma_p W_p}{h\nu}} \right) . \quad (3.20)$$

Dabei bezeichnet σ_p den Absorptionsquerschnitt für das eingestrahlte Licht. Die Änderung des Absorptionskoeffizienten $\Delta\alpha$ bewirkt nach der Kramers-Krönig-Relation eine Änderung des Brechungsindex n :

$$\Delta n(\lambda) = \frac{1}{2\pi^2} \int_0^\infty \frac{\Delta\alpha(\lambda')}{1 - (\lambda'/\lambda)^2} d\lambda' . \quad (3.21)$$

Eine detaillierte Betrachtung der Kramers-Krönig-Relationen wird aufgrund verschiedener Varianten und Definitionen in der Literatur in Anhang 9.1 gegeben. Die verwendete Kramers-Krönig-Relation (Gleichung 3.21) gilt in dieser Form nur für schwache Absorptionskoeffizienten α und $\Delta\alpha \ll \frac{4\pi n}{\lambda}$ sowie kleine Brechungsindexänderungen $\Delta n \ll n$.

3.2.2 Beugungseffizienz

3.2.2.1 Reflexionsgitter

Im Rahmen dieser Arbeit werden dynamische Gitter zur verteilten Rückkopplung als Laserresonatoren, d.h. als Reflexionsgitter, eingesetzt (Abschnitt 4). Für die Beugungseffizienz η eines derartigen Gitters gilt nach H. Kogelnik [136]:

$$\eta = \left(1 + \frac{1 - \chi^2/\phi^2}{\sinh^2(\phi\sqrt{1 - \chi^2/\phi^2})} \right)^{-1} \quad \text{mit} \quad (3.22)$$

$$\phi = \frac{\pi \Delta n d}{\lambda} , \quad (3.23)$$

$$\chi = \frac{(\lambda - \lambda_p) \pi d}{\lambda_b \Lambda} \text{ und} \quad (3.24)$$

$$\lambda_b = 2n\Lambda \quad (\text{Braggbedingung}) . \quad (3.25)$$

Dabei bezeichnet Δn die Brechungsindexmodulation, d die Dicke des Gitters, λ die Wellenlänge des eingestrahlten Lichts und Λ die Gitterperiode. Die Bragg-Bedingung nach Gleichung 3.25 wird in Abschnitt 4.2 im Rahmen des zugehörigen Ratengleichungsmodells vorgestellt. Für den Fall $\lambda = \lambda_b$ vereinfacht sich Gleichung 3.22:

$$\eta = \tanh^2 \left(\frac{\pi \Delta n d}{\lambda_b} \right) . \quad (3.26)$$

$$(3.27)$$

Die allgemeine Bedingung für die Beugungseffizienz η des Reflexionsgitters nach Gleichung 3.22 ermöglicht für die in Abschnitt 4 dargestellte Konfiguration eine Abschätzung des möglichen Emissionswellenlängenbereichs des DFB-Lasers.

3.2.2.2 Selbstbeugung

Die gitterinduzierenden Pumpstrahlen können an dem induzierten Gitter selbst gebeugt werden. Dieser Effekt wird als Selbstbeugung bezeichnet und kann durch die Detektion des transmittierten Lichts bestimmt werden. Für die Beugungseffizienz η eines idealen, schwachen Gitters der Dicke d gilt [131, 137]²:

$$\eta = \frac{d^2}{4} \left(\Delta \alpha^2 + \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^2 \Delta n^2 \right) = \left(\frac{\pi \Delta n d}{\lambda} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \alpha d}{2n\lambda} \right)^2 . \quad (3.28)$$

Aufgrund von permanenten Modifikationen des gepumpten Volumens kann die Beugungseffizienz variieren und so den Kontrast des Gitters verändern [131]. Diese Kontraständerung wird im Rahmen dieser Arbeit während des Laserbetriebs der DFB-Schicht orts- und zeitaugelöst mit dem optischen Nahfeldmikroskop detektiert.

3.2.3 Transiente Gitter in Farbstofflasersystemen

Anwendung findet die Methode der interferometrischen Gittererzeugung bei der Realisierung von Farbstofflasern mit verteilter Rückkopplung, welche in Abschnitt 4 vorgestellt werden. Die Detektion des induzierten Gitters ist jedoch an dem Farbstoffstrahl (engl.:

²D. Langhans et al. [135] erweiterten diese Gleichung um Korrekturfaktoren, welche aufgrund der zeitlichen Entwicklung während der Pulsdauer, des gaußförmigen Profils der eingestrahlten Intensität, der Polarisation des Pump- und des Probelichtes sowie des Kontrastverhältnisses V des induzierten Gitters notwendig sind.

dye jet) mit klassischen optischen Mikroskopen aufgrund der begrenzten Auflösung (Abschnitt 2.1) nicht möglich. Ebenso wird die Untersuchung des Farbstoffstrahles durch den notwendigen geringen und stabilen Abstand zwischen Sonde und Probe erschwert (Abschnitt 2.3). Daher wird der Laserfarbstoff in einen Festkörper eingebettet (Abschnitt 4.1.1), welcher auf ein Glasprisma aufgebracht und derart beleuchtet wird, dass eine Totalreflexion am Übergang von der dotierten Schicht zur Luft auftritt und sich innerhalb der farbstoffdotierten Schicht ein Interferenzmuster ausbildet. Das evaneszente Feld des induzierten Interferenzmusters kann mit dem optischen Nahfeldmikroskop vermessen werden, was Rückschlüsse auf das Verhalten des transienten Gitters im Laserbetrieb ermöglicht.

3.3 Evaneszenzfeld

Die Existenz eines evaneszenten Feldes bei der Totalreflexion wurde erstmals 1704 von I. Newton dargestellt: er beobachtete das optische Tunneln von Licht durch einen schmalen Luftspalt zwischen zwei Medien. Dieser Effekt wird beim Design optischer Fasern, deren optischer Kopplung und Verstärkung sowie der optischen Nahfeldmikroskopie genutzt. Eine detaillierte Abhandlung zu möglichen Applikationen liefert F. de Fornel [36].

Bei einer Totalreflexion kommt es zusätzlich zu einer Verschiebung der Position des reflektierten Strahls. Dieser Effekt wurde erstmals von F. Goos und H. Hänchen entdeckt und der Strahlversatz nach ihnen als Goos-Hänchen-Verschiebung benannt [138]. Zur Beobachtung dieses Effekts beschichteten sie eine Glasoberfläche halbseitig mit Silber und beleuchteten den Grenzbereich zwischen beschichteter und reiner Glasoberfläche derart, dass im Falle des Glases eine Totalreflexion und im Falle der Beschichtung eine Reflexion auftrat. Es ergab sich eine Verschiebung zwischen beiden Teilstrahlen. Durch diesen Effekt können Rückschlüsse auf die Totalreflexion gezogen werden, ohne dass das evaneszente Feld, z.B. durch ein weiteres angrenzendes Medium, gestört wird.

Anwendung findet eine derartige Störung des evaneszenten Feldes durch ein angrenzendes Medium z.B. im Bereich der Evaneszenzfeldspektroskopie, welche in der Dissertationsschrift von U. Willer ausgiebig diskutiert wird [139] und z.B. als patentierter Evaneszenzfeldsensor zur in-situ Diagnostik von vulkanischen Fumarolengasen eingesetzt wird [140, 141].

3.3.1 Theoretisches Modell

Für den Übergang zwischen zwei unendlich ausgedehnten nichtabsorbierenden Medien sind der Einstrahl- und der Reflexionswinkel Θ bzw. φ über das Brechungsgesetz von Snellius mit den Brechungsindices n_1 und n_2 der beteiligten Medien verknüpft (Abbildung 3.6):

$$n_1 \sin \Theta = n_2 \sin \varphi \text{ bzw.} \quad (3.29)$$

$$\cos \varphi = \pm \frac{1}{n_2} \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \Theta} . \quad (3.30)$$

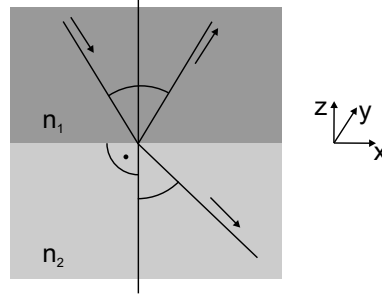


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung des unter dem Winkel Θ einfallenden, des unter dem Winkel Θ reflektierten und des nach dem Gesetz von Snellius gebrochenen Strahles an der Grenzfläche zweier Medien mit Brechungsindex n_1 und n_2 mit $n_1 > n_2$. Die Pfeile geben die Ausbreitungsrichtung der Strahlen an.

Die Fresnelgleichungen liefern die relativen Intensitätsverteilungen zwischen einfallendem, reflektiertem und transmittiertem Feld [142]. Liegen die beteiligten Frequenzen im optischen Bereich, kann $\mu/\mu_0 = 1$ gesetzt werden und für den transmittierten (t) und den reflektierten (r) Anteil und dessen parallelen (\parallel) bzw. senkrechten (\perp) Polarisationszustand gilt dann in Abhängigkeit von der Amplitude A des einfallenden Feldes:

$$t_{\parallel} = \frac{2n_1 \cos \Theta}{n_2 \cos \Theta + n_1 \cos \varphi} A_{\parallel}, \quad (3.31)$$

$$t_{\perp} = \frac{2n_1 \cos \Theta}{n_1 \cos \Theta + n_2 \cos \varphi} A_{\perp}, \quad (3.32)$$

$$r_{\parallel} = \frac{n_2 \cos \Theta - n_1 \cos \varphi}{n_2 \cos \Theta + n_1 \cos \varphi} A_{\parallel}, \quad (3.33)$$

$$r_{\perp} = \frac{n_1 \cos \Theta - n_2 \cos \varphi}{n_1 \cos \Theta + n_2 \cos \varphi} A_{\perp}. \quad (3.34)$$

Für $n_1 > n_2$ existiert ein kritischer Winkel Θ_k , für den nach dem Brechungsgesetz von Snellius ein Brechungswinkel $\varphi = 90^\circ$ auftritt:

$$\Theta_k = \arcsin \frac{n_2}{n_1} . \quad (3.35)$$

Für Winkel $\Theta < \Theta_k$ folgt für die Fresnelgleichungen mit Gleichung 3.30:

$$t_{\parallel} = \frac{2n_1 \cos \Theta}{n_2 \cos \Theta + \frac{n_1}{n_2} \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \Theta}} A_{\parallel}, \quad (3.36)$$

$$t_{\perp} = \frac{2n_1 \cos \Theta}{n_1 \cos \Theta + \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \Theta}} A_{\perp}, \quad (3.37)$$

$$r_{\parallel} = \frac{n_2 \cos \Theta - \frac{n_1}{n_2} \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \Theta}}{n_2 \cos \Theta + \frac{n_1}{n_2} \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \Theta}} A_{\parallel}, \quad (3.38)$$

$$r_{\perp} = \frac{n_1 \cos \Theta - \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \Theta}}{n_1 \cos \Theta + \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \Theta}} A_{\perp}. \quad (3.39)$$

Für Eintrittswinkel $\Theta > \Theta_k$ existiert keine rein reellwertige Lösung für den Brechungswinkel φ . Für Gleichung 3.30 gilt dann:

$$\cos \varphi = \pm \frac{1}{n_2} \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \Theta} = \pm i \frac{1}{n_2} \sqrt{n_1^2 \sin^2 \Theta - n_2^2} \quad (3.40)$$

und für die Fresnelformeln in der Form 3.31 bis 3.34 folgt:

$$t_{\parallel} = \frac{2n_1 \cos \Theta}{n_2 \cos \Theta + i \frac{n_1}{n_2} \sqrt{n_1^2 \sin^2 \Theta - n_2^2}} A_{\parallel}, \quad (3.41)$$

$$t_{\perp} = \frac{2n_1 \cos \Theta}{n_1 \cos \Theta + i \sqrt{n_1^2 \sin^2 \Theta - n_2^2}} A_{\perp}, \quad (3.42)$$

$$r_{\parallel} = \frac{\left(\frac{n_2}{n_1}\right)^2 \cos \Theta - i \sqrt{\sin^2 \Theta - \left(\frac{n_2}{n_1}\right)^2}}{\left(\frac{n_2}{n_1}\right)^2 \cos \Theta + i \sqrt{\sin^2 \Theta - \left(\frac{n_2}{n_1}\right)^2}} A_{\parallel}, \quad (3.43)$$

$$r_{\perp} = \frac{\cos \Theta - i \sqrt{\sin^2 \Theta - \left(\frac{n_2}{n_1}\right)^2}}{\cos \Theta + i \sqrt{\sin^2 \Theta - \left(\frac{n_2}{n_1}\right)^2}} A_{\perp}. \quad (3.44)$$

Für Eintrittswinkel $\Theta > \Theta_k$ gilt demnach für das Reflexionsvermögen $R_{\parallel} = |r_{\parallel}^2|/|A_{\parallel}|^2 = 1$ und $R_{\perp} = |r_{\perp}|^2/|A_{\perp}|^2 = 1$ und es findet im zeitlichen Mittel kein Energietransfer in das zweite Medium statt. Die „transmittierten“ Anteile des elektrischen Feldes

$$E_x(t) = t_{\parallel} \cos \varphi e^{-i\tau}, \quad E_y(t) = t_{\perp} e^{-i\tau}, \quad E_z(t) = t_{\parallel} \sin \varphi e^{-i\tau} \quad (3.45)$$

können mit

$$\tau = \omega \left(t - n_2 \frac{x \sin \varphi + z \sin \varphi}{c} \right) \quad (3.46)$$

und den Fresnelgleichungen in der Form 3.41 bis 3.44 bestimmt werden [142]. So ergibt sich für den s-polarisierten Anteil des „transmittierten“ elektrischen Feldes:

$$E_y(t) = t_{\parallel} e^{-i\tau} = t_{\parallel} e^{i \frac{2\pi n_1 \sin \theta}{\lambda} x} e^{\pm z/d_p} e^{-i \frac{2\pi c}{\lambda} t}. \quad (3.47)$$

Im zeitlichen Mittel folgt:

$$E(x, z) = E_0 e^{i \frac{2\pi n_1 \sin \theta}{\lambda} x} e^{\pm z/d_p}, \quad (3.48)$$

wobei

$$|E_0|^2 = \frac{4n_1^2 \cos^2 \theta}{n_1^2 - n_2^2} |E_{\text{einfallend}}|^2 \quad (3.49)$$

gilt und $E_{\text{einfallend}}$ das elektrische Feld der einfallenden Welle beschreibt. Das in Gleichung 3.48 beschriebene Feld ist inhomogen: es breitet sich in x-Richtung, d.h. parallel zur Oberfläche, aus und nimmt in z-Richtung, d.h. senkrecht zur Oberfläche, exponentiell zu (Pluszeichen in Gleichung 3.48) oder exponentiell ab (Minuszeichen in Gleichung 3.48). Die physikalische Situation lässt jedoch nur die exponentielle Abnahme zu. Das hier beschriebene Feld wird als evaneszentes Feld bezeichnet und der in Gleichung 3.48 eingeführte Parameter d_p bezeichnet die Eindringtiefe des elektrischen Feldes ins angrenzende Medium:

$$d_p = \frac{\lambda}{2\pi \sqrt{n_1^2 \sin^2 \theta - n_2^2}} \quad (3.50)$$

Es ist zu beachten, dass in folgenden Messungen die Intensität des evaneszenten Feldes

$$I(x, z) = I_0 e^{-2z/d_p} \quad (3.51)$$

bestimmt wird, wodurch grundsätzlich $d_p/2$ gewonnen wird. Sofern nicht anders angegeben, wird im Folgenden die nach Gleichung 3.50 definierte Eindringtiefe d_p diskutiert.

Die Detektion des evaneszenten Feldes ist durch das Annähern eines weiteren dritten Mediums, z.B. eine Glasfaserspitze, möglich. Dadurch wird das evaneszente Feld gestört, wodurch Teile des evaneszenten Feldes in propagierende Anteile umgewandelt werden, welche detektiert werden können. Das hier vorgestellte Zwei-Medien-Modell erfasst eine derartige Störung nicht. Vielmehr ist bei einer derartigen Messung ein Drei-Medien-Modell (Abbildung 3.7) anzuwenden.

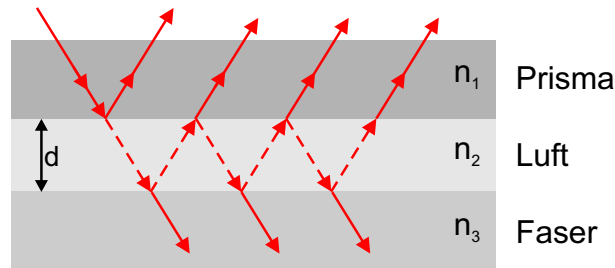


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung des Drei-Medien-Modells bestehend aus unter Totalreflexion beleuchteter Probenfläche mit Brechungsindex n_1 , dem mit Luft gefüllten Medium zwischen Probenoberfläche und Faser (n_2) sowie der Faser (n_3). Die aus den unterschiedlichen Brechungsindizes resultierenden Richtungsänderungen sind in dieser Darstellung nicht berücksichtigt.

Ein Drei-Medien-Modell wurde bereits von I. N. Court und F. K. von Willisen [143] und S. Zhu et al. [144] hergeleitet. Dabei werden die in Abbildung 3.7 dargestellten, durch

wiederholte Brechung und Reflexion auftretenden, Vielstrahlinterferenzen durch eine Reihenentwicklung berücksichtigt. Für die Transmission T ins dritte Medium gilt [144]:

$$\frac{1}{T} = \alpha \sinh^2 y + \beta, \quad (3.52)$$

wobei für die Variablen y , α und β gilt:

$$y = \frac{2\pi d/\lambda}{\sqrt{n_1^2 \sin^2 \Theta - n_2^2}}, \quad (3.53)$$

$$\alpha_{\perp} = \frac{((\frac{n_1}{n_2})^2 - 1)((\frac{n_3}{n_2})^2 - 1)}{4(\frac{n_1}{n_2})^2 \cos \Theta ((\frac{n_1}{n_2})^2 \sin^2 \Theta - 1) \sqrt{(\frac{n_3}{n_1})^2 - \sin^2 \Theta}}, \quad (3.54)$$

$$\beta_{\perp} = \frac{\left(\sqrt{(\frac{n_3}{n_1})^2 - \sin^2 \Theta} + \cos \Theta\right)^2}{4 \cos \Theta \sqrt{(\frac{n_3}{n_1})^2 - \sin^2 \Theta}}, \quad (3.55)$$

$$\alpha_{\parallel} = \frac{\alpha_{\perp} n_1^2}{n_3^2} \left(\left(\left(\frac{n_1^2}{n_2^2} + 1 \right) \sin^2 \Theta - 1 \right) \left(\left(\frac{n_3^2}{n_2^2} + 1 \right) \sin^2 \Theta - \frac{n_3^2}{n_1^2} \right) \right), \quad (3.56)$$

$$\beta_{\parallel} = \frac{\left(\sqrt{(\frac{n_3}{n_1})^2 - \sin^2 \Theta} + (\frac{n_3}{n_1})^2 \cos \Theta\right)^2}{4(\frac{n_3}{n_1})^2 \cos \Theta \sqrt{(\frac{n_3}{n_1})^2 - \sin^2 \Theta}}. \quad (3.57)$$

Hier bezeichnet d die Dicke der mittleren Schicht, d.h. den Abstand zwischen Prismenoberfläche und Faserspitze.

In Abbildung 3.8 sind die resultierenden elektrischen Feldstärken, die mit den beiden Modellen in Abhängigkeit vom Abstand zur Prismenoberfläche bestimmt wurden, dargestellt. Es zeigt sich der im Drei-Medien-Modell berücksichtigte Einfluss des dritten Mediums auf das evaneszente Feld. Dieser Einfluss resultiert in einer kleineren Steigung der elektrischen Feldstärke im Nahfeld der Oberfläche von $d = 0$ nm bis ca. 100 nm. Beide Modelle setzen voraus, dass alle beteiligten Medien eine unendliche laterale Ausdehnung haben. Dies ist für das dritte Medium, in dem hier betrachteten Fall die Faserspitze, nicht der Fall. Dies erklärt, warum eine derart starke Störung, wie sie Abbildung 3.8 zeigt, in früheren Experimenten nicht beobachtet wurde [139].

Als Entwicklungsansatz für ein neues Modell wurden die mit Hilfe des optischen Nahfeldmikroskops durch Wegziehscans gewonnenen Intensitätsdaten $I(d)$ I) im Bereich von $I_1 = I_0$ bis $I_2 = 0,05 \cdot I_0$ mit dem Drei-Medien-Modell numerisch angepasst und II) im Bereich $I_1 = 0,7 \cdot I_0$ bis $I_2 = 0,05 \cdot I_0$ direkt exponentiell numerisch angepasst. Die untere Grenze von $I_2 = 0,05 \cdot I_0$ wurde gewählt, um den Bereich höherer Intensitäten stärker zu gewichten.

Abbildung 3.9 zeigt die über die Faserspitze detektierte Intensität in Abhängigkeit vom Abstand zwischen Faser und Probenoberfläche und die numerische Anpassung nach Modell

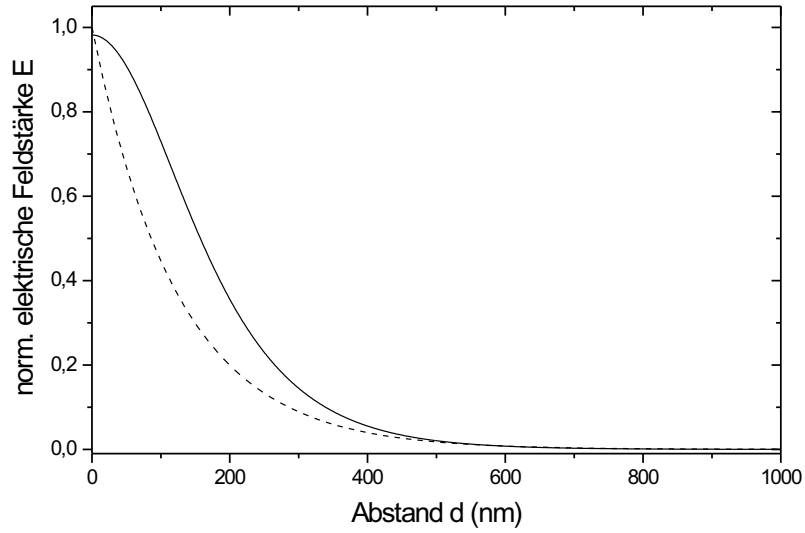


Abbildung 3.8: Der gestrichelte Graph zeigt das exponentielle Abklingen der elektrischen Feldstärke eines ungestörten evaneszenten Feldes, welches sich ausgehend von Medium 1 in Medium 2 ausbreitet (Zwei-Medien-Modell). Der durchgezogene Graph zeigt die nach dem Drei-Medien-Modell erwartete Transmission ins dritte Medium bzw. in die Faser. Dazu wurden folgende Parameterwerte verwendet: $n_1 = 1,65$, $n_2 = 1$, $n_3 = 1,45$, $\lambda = 764$ nm und $\theta = 45^\circ$. Daraus ergibt sich für das Zwei-Medien-Modell eine Eindringtiefe des elektrischen Feldes von $d_p = 126,42$ nm. Für das Drei-Medien-Modell ergibt sich eine Schichtdicke $d_{1/e}$, bei der die in das dritte Medium eingekoppelte elektrische Feldstärke auf den $1/e$ -Teil abgefallen ist, von $d_{1/e} = 199$ nm.

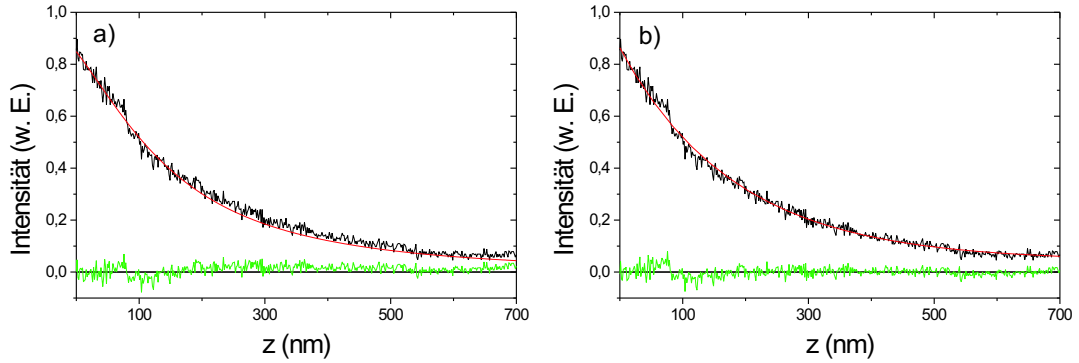


Abbildung 3.9: Beide Abbildungen zeigen die über die Faserspitze detektierte Intensität I eines evaneszenten Feldes in Abhängigkeit vom Abstand zwischen Faser und Probenoberfläche sowie die numerische Anpassung nach a) Modell I und b) Modell II. Zum besseren Vergleich beider Modelle sind die numerischen Anpassungen und die zugehörigen Residuen (grün) für den gesamten Datensatz dargestellt.

I (Drei-Medien-Modell) bzw. Modell II (Zwei-Medien-Modell mit eingeschränktem Anpassungsbereich). Die Residuen beider Modelle ergeben eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment ab einem Abstand $z > 100$ nm der Faserspitze von der Oberfläche, so dass im Folgenden Modell II zur Auswertung von nahfeldmikroskopischen Wegziehscans zur Anwendung kommt.

Das favorisierte Modell II wird durch M. Ohtsu et al. [35,145] ebenfalls, leicht modifiziert, verwendet: sie schlagen ein Modell vor, welches den Aperturdurchmesser der Faserspitze und einen abstandsabhängigen Korrekturfaktor beinhaltet, wodurch eine numerische Anpassung über den gesamten Datensatz ermöglicht wird.

3.4 Bestimmung des optischen Auflösungsvermögens des Nahfeldmikroskops

Die Bestimmung des optischen Auflösungsvermögens des Nahfeldmikroskops kann, wie in Abschnitt 2.8 gezeigt, nur in Bereichen niedriger Oberflächenrauigkeiten durchgeführt werden. Dazu wurden Messungen an evaneszenten Interferenzstrukturen, welche in einem einseitig silberverspiegelten Prisma erzeugt wurden, durchgeführt. Der Aufbau ähnelt dem von A. J. Meixner et al. [146] vorgestellten und ist schematisch in Abbildung 3.10 dargestellt. Über eine Prismenseite wird kohärentes monochromatisches Licht unter einem festen Winkel von $\theta = 45^\circ$ eingekoppelt, wodurch Totalreflexion an der Prismenoberseite auftritt. An der silberbeschichteten Seite findet ebenfalls eine Reflexion statt, wodurch eine Überlagerung des einlaufenden und reflektierten Strahls auftritt. Die resultierende Interferenzstruktur wird an der Oberseite des Prismas mit dem in Abschnitt 2.5 vorgestellten

optischen Nahfeldmikroskop ausgewertet.

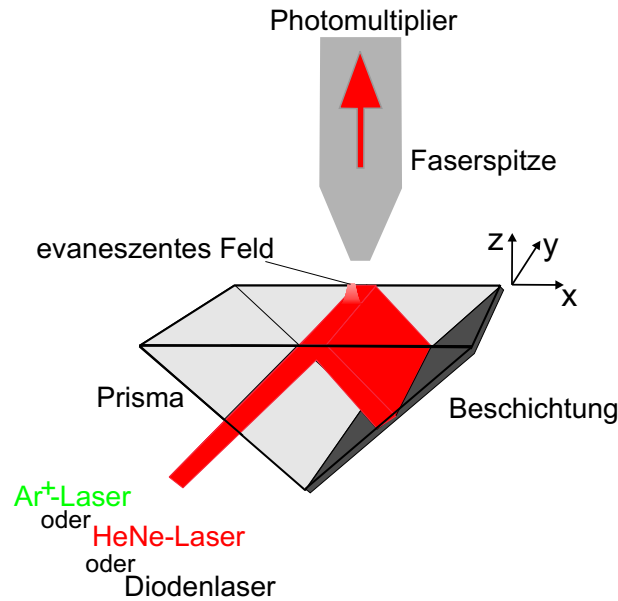


Abbildung 3.10: Schematische Darstellung des interferometrischen Prismenaufbaus. Das durch die Totalreflexion entstehende evaneszente Feld wird durch die Faserspitze „gestört“ und in ein propagierendes Feld umgewandelt, welches mit einem Photomultiplier detektiert wird.

Es wurden verschiedene Laser zur Detektion des Interferenzstreifenabstandes und der Bestimmung der Eindringtiefe des evaneszenten Feldes eingesetzt. Das verwendete BK7-Glas-Prisma [147] besitzt für die Emissionswellenlängen des eingesetzten Ar^+ -Ionen-Lasers³, des HeNe-Gaslaser⁴ und des Diodenlasers⁵ verschiedene Brechungsindizes (Tabelle 3.1). Alle

Lasertyp	Ar^+ -Laser	HeNe-Gaslaser	Diodenlaser
Wellenlänge (nm)	488,0	632,8	850,0
Brechungsindex	1,522	1,515	1,510

Tabelle 3.1: Brechungsindizes von BK7-Glas für die eingesetzten Wellenlängen [103].

Laser laufen im cw-Modus (engl.: continuous wave) und haben eine Ausgangsleistung von $I = 10 \text{ mW}$ bis 16 mW . Die in die Prismenkonfiguration eingestrahlte Intensität wurde durch Grauglasfilter [147] für alle Laser auf $I = 8 \text{ mW}$ reduziert.

Für die spektrale Auswertung des über die Faserspitze detektierten Signals wurde ein 0,2 m-Gittermonochromator (Abschnitt 5.2) der Firma Jobin Yvon mit wechselbaren Spalten und festem Gitter ($g=1200 \text{ Striche/mm}$) eingesetzt. Die Auflösung beträgt

³Spectra Physics, Modell 162A-07, $I = 16 \text{ mW}$, cw

⁴Carl Zeiss Jena, Modell LGK 7628, $I = 15 \text{ mW}$, cw

⁵SDL, Modell TC40-D, $I = 10 \text{ mW}$, cw

$\Delta\lambda = 0,5 \text{ nm}$ für $\lambda = 500 \text{ nm}$ [148]. Das Faserende der Spitze wird zur spektralen Auswertung direkt in den Eingangspalt des Monochromators und der Ausgangsspalt direkt auf eine Photomultiplerröhre (Hamamatsu R928 [149]) abgebildet. Der Monochromator wird auf die jeweilige Laserwellenlänge fest eingestellt. Die Versorgung der Photomultiplerröhre erfolgt über einen Hochspannungsverstärker (Canberra H.V. Power Supply Model 3002 [150]). Die Auswertung des Photomultipliersignals erfolgt nach der Signalaufbereitung durch einen schnellen Vorverstärker (Ortec 9301 Fast Preamplifier [151]) und einen Diskriminator (Ortec 9302 Amplifier Discriminator [152]) mit Hilfe eines Photonenzählers (Ortec 9315 Photon Counter [153]). Die resultierenden Zählraten werden über einen DA-Wandler (Ortec 9325 DA-Converter [154]) zur Auswertung durch die NSOM-Steuerung bereitgestellt.

3.4.1 Messung des Interferenzstreifenabstandes

Die Interferenzstruktur wird mit dem im Sammelmodus betriebenen optischen Nahfeldmikroskop vermessen.

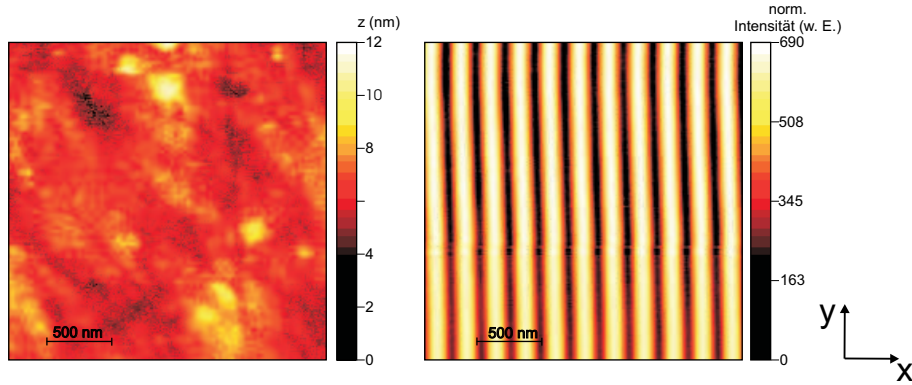


Abbildung 3.11: Nahfeldmikroskopische Aufnahme der mit einem Ar^+ -Laser ($\lambda = 488 \text{ nm}$) unter Totalreflexion beleuchteten Prismenfläche. Die Oberfläche weist eine geringe Rauigkeit auf (linke Abbildung). Das optische Bild (rechte Abbildung) zeigt die im Nahfeld der Oberfläche gemessene Intensität. Es ist eine Interferenzstruktur zu erkennen.

Abbildung 3.11 zeigt das topographische und optische Bild der mit dem Ar^+ -Laser unter Totalreflexion beleuchteten Prismenoberseite. Das topographische Bild deutet auf eine geringe Oberflächenrauigkeit hin. Das optische Bild zeigt eine deutliche Interferenzstruktur, welche durch die Störung des evaneszenten Feldes durch die Spitze detektierbar wird. Diese Interferenzstruktur besitzt einen mittleren Streifenabstand von $\Lambda = (226,51 \pm 6,24) \text{ nm}$. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem theoretischen Wert $\Lambda = \lambda / (2n_{\text{Prisma}} \sin 45^\circ) = (226,68 \pm 2,03) \text{ nm}$ nach Gleichung 3.1 überein. Dabei wurde bei der Fehlerabschätzung ein maximaler Fehler des Einkoppelwinkels von $\Delta\theta = 0,5^\circ$ angenommen.

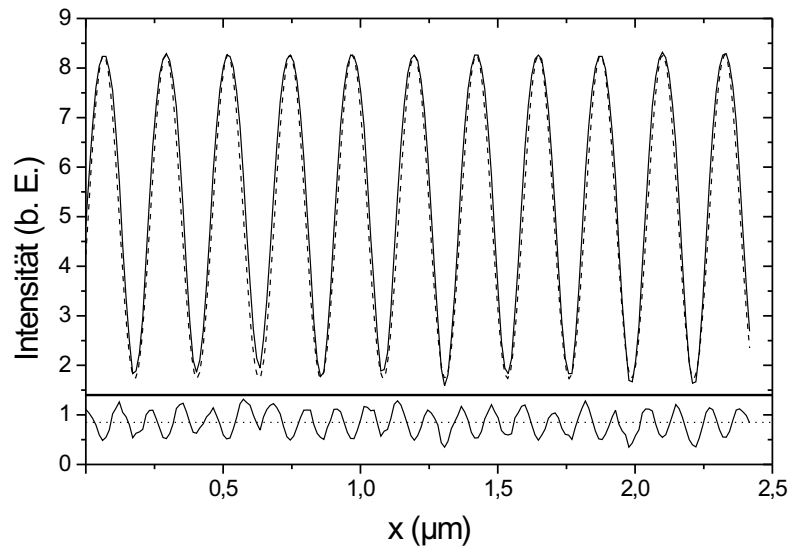


Abbildung 3.12: Intensitätsprofil senkrecht zur Interferenzstruktur des in Abbildung 3.11 dargestellten optischen Bildes. Der gestrichelte Graph stellt die Anpassung einer Sinusfunktion dar. Im unteren Teil des Graphen ist die zugehörige Residuenkurve dargestellt. Es ergibt sich ein Streifenabstand von $\Lambda = (226,51 \pm 6,24) \text{ nm}$ und ein Kontrastverhältnis von $V = 0,85 \pm 0,03$.

Zur Bestimmung des Kontrastverhältnisses nach Gleichung 3.10 ist in Abbildung 3.12 ein Intensitätsprofil senkrecht zum Interferenzstreifenmuster, welches um das Untergrundrauschen des Photomultipliers bereinigt wurde, dargestellt. Es ergibt sich ein Kontrastverhältnis von $V = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min}) = 0,85 \pm 0,03$. Die in Abbildung 3.12 dargestellte Anpassung einer Sinusfunktion und die zugehörige Residuenkurve zeigen eine gute Übereinstimmung zwischen dem gemessenen und dem theoretischen Intensitätsverlauf.

Das Experiment wurde mit dem HeNe-Laser wiederholt und es ergab sich ein Streifenabstand von $\Lambda = (295,11 \pm 1,95)$ nm und ein Kontrastverhältnis von $V = 0,82 \pm 0,05$.

Für das gleiche Experiment mit dem Diodenlaser ergab sich ein Streifenabstand von $\Lambda = (397,11 \pm 2,5)$ nm und ein Kontrastverhältnis von $V = 0,89 \pm 0,07$. Die experimentell bestimmten Interferenzstreifenabstände stimmen im Rahmen der Messgenauigkeit sehr gut mit den theoretisch erwarteten Werten überein. Die jeweiligen Werte für die Wellenlängen λ und die Brechungsindizes $n(\lambda)$ des verwendeten Prismas sind Tabelle 3.1 entnommen. Die theoretischen Werte sind $\Lambda(\lambda = 632,8 \text{ nm}) = (295,33 \pm 2,58)$ nm bzw. $\Lambda(\lambda = 850,0 \text{ nm}) = (398,08 \pm 3,47)$ nm. Auch in diesen Fällen wurde bei der Fehlerabschätzung ein Fehler des Einkoppelwinkels von $\Delta\theta = 0,5^\circ$ angenommen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3.2 zusammengefasst.

Die gemessenen Kontrastverhältnisse liegen deutlich über dem von Meixner et al. [146] gemessenen Kontrastverhältnis von $V_M = 0,33$, sind aber immer noch kleiner als theoretisch erwartet: Durch die aufgebrauchte Beschichtung wird das eingestrahlte Feld der Intensität I_1 reflektiert. Die Intensität des reflektierten Feldes wird mit $I_2 = 0,9 \cdot I_1$ abgeschätzt. Damit ergibt sich nach Gleichung 3.10 ein theoretisches Kontrastverhältnis von $V = 0,99$.

Der Unterschied zwischen den experimentellen Daten und der Theorie liegt in dem endlichen Aperturdurchmesser a der Spitze und dem Abstand d zwischen Probe und Spitze begründet und ermöglicht eine Abschätzung des lateralen Auflösungsvermögens Δx_{opto} des verwendeten Nahfeldmikroskops. Dazu wird die Antwortfunktion des Mikroskops mathematisch durch einen gleitenden Durchschnitt simuliert (Abbildung 3.13). Die Anzahl der Punkte, welche für die Durchschnittsbildung ausgewertet werden, repräsentiert die laterale optische Auflösung in nm. Der gleitende Durchschnitt wird an der sinusförmigen Intensitätsmodulation mit Kontrast $V = 0,99$ gebildet und der resultierende Datensatz bezüglich seiner Minimal- und Maximalwerte zur Bestimmung des Kontrastverhältnisses V ausgewertet.

Abbildung 3.13 zeigt die als sinusförmig angenommene Intensitätsverteilung mit dem Kontrastverhältnis $V = 0,99$ und einem Streifenabstand $\Lambda = 226$ nm sowie den gleitenden Durchschnitt (gestrichelt) über eine Breite von $k = 70$ Punkte bzw. Nanometer. Es ergibt sich für den gleitenden Durchschnitt ein Kontrastverhältnis von $V = 0,85$. Die Breite k des gleitenden Durchschnitts liefert die laterale optische Auflösung zu $\Delta x_{\text{opto}} = 70$ nm. Die analoge Betrachtung für die Streifenabstände $\Lambda_{632,8} = 295$ nm und $\Lambda_{850} = 398$ nm mit den gemessenen Kontrastverhältnissen $V_{632,8} = 0,82$ bzw. $V_{850} = 0,89$ ergibt eine Auflösung von $\Delta x_{\text{opto}} = 100$ nm. Der Unterschied in der Auflösung ist auf den Einsatz verschiedener Faserspitzen während der Experimente zurückzuführen.

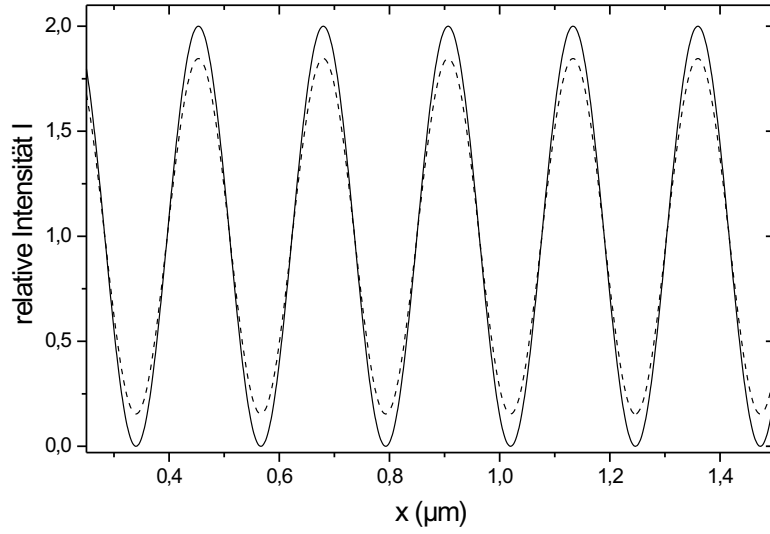


Abbildung 3.13: Die Abbildung zeigt die erwartete Intensitätsmodulation (schwarze Linie) bei unter einem Winkel von $\theta = 45^\circ$ einfallendem Licht der Wellenlänge $\lambda = 488 \text{ nm}$. Aufgrund der Konfiguration besitzt die Intensitätsmodulation einen Kontrast von $V=0,99$. In dieser Darstellung entspricht ein Bildpunkt gerade einem Nanometer. Die Antwortfunktion des Mikroskops wird durch den gleitenden Durchschnitt über k Punkte bzw. $k \text{ nm}$ simuliert (gestrichelt). Durch den Vergleich des gemessenen Kontrastverhältnisses und der Simulation kann auf die Antwortfunktion bzw. die laterale optische Auflösung Δx_{opto} des Mikroskops zurückgeschlossen werden. Es ergibt sich für das gemessene Kontrastverhältnis von $V = 0,85$ bei $\theta = 45^\circ$ und $\lambda = 488$ ein Auflösung von $\Delta x_{\text{opto}} = 70 \text{ nm}$.

Insgesamt ergibt sich eine laterale optische Auflösung des Mikroskops von $\Delta x_{\text{opto}} < 100 \text{ nm}$.

3.4.2 Messung der Eindringtiefe des evaneszenten Feldes

Für die Messung der Eindringtiefe d des evaneszenten Feldes wird die beschichtete Faser an einer festen xy -Position auf der unter Totalreflexion beleuchteten Prismenfläche bis ins Nahfeld der Oberfläche gebracht und dann definiert bei gleichzeitiger Detektion der Intensität des Lichtfeldes schrittweise entfernt.

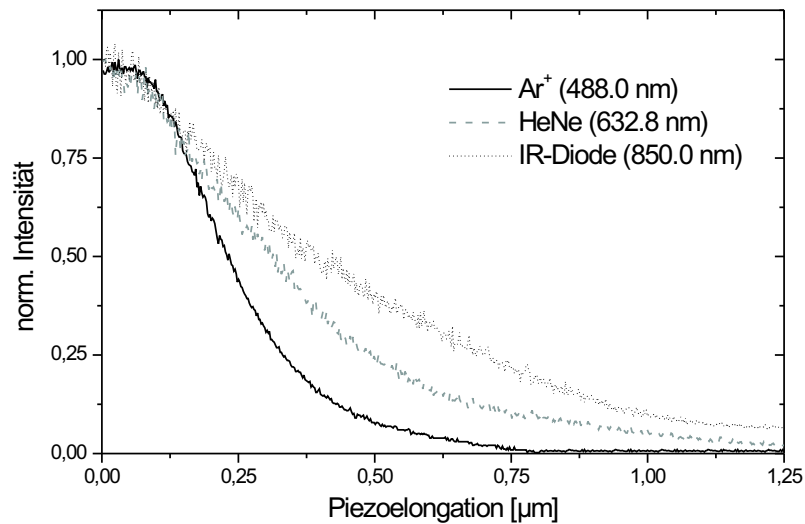


Abbildung 3.14: Die Abbildung zeigt die aus den Messungen resultierenden Eindringtiefen verschiedener Wellenlängen in der Prismenkonfiguration.

Die normierten Daten sind in Abbildung 3.14 dargestellt. Es ist zu beachten, dass die Intensität des Feldes und nicht das elektrische Feld direkt gemessen wird. In der Abbildung ist der nach Gleichung 3.51 notwendige Faktor 2 bereits implementiert. Es ist deutlich der in Abschnitt 3.3.1 diskutierte Einfluss der Faserspitze im Nahfeld der Oberfläche zu erkennen. Die Daten wurden nach Modell II im Bereich 217 nm bis 1,25 μm (Datenpunkte 100...600) exponentiell numerisch angepasst. Dabei wurde für alle Anpassungen $I_0 = 1.5$ und $y_0 = 0$ gesetzt. Die experimentellen Ergebnisse sind in Tabelle 3.2 den theoretischen Ergebnissen gegenübergestellt.

Laserwellenlänge λ (nm)	488,0	632,8	850,0
Brechungsindex n	1,522	1,515	1,510
Streifenabstand Λ_{exp} (nm)	$226,51 \pm 6,24$	$295,11 \pm 1,95$	$397,11 \pm 2,5$
Streifenabstand Λ_{theo} (nm)	$226,68 \pm 2,03$	$295,33 \pm 2,58$	$398,08 \pm 3,47$
Eindringtiefe d_{exp} (nm)	$186,5 \pm 0,6$	$278,6 \pm 0,4$	$336,5 \pm 0,1$
Eindringtiefe d_{theo} (nm)	195 ± 13	262 ± 18	362 ± 26

Tabelle 3.2: Übersicht der experimentell bestimmten und der theoretisch erwarteten Streifenabstände Λ_{exp} bzw. Λ_{theo} und der Eindringtiefen d_{exp} bzw. d_{theo} . Für die theoretischen Berechnungen wurde ein maximaler Fehler des Einkoppelwinkels von $\Delta\theta = 0,5^\circ$ angenommen.

3.4.3 Vergleich der Ergebnisse mit theoretischen Modellen

Ein Vergleich der experimentell gewonnenen und mit dem in Abschnitt 3.3.1 vorgestellten Modell ausgewerteten Daten mit den theoretisch berechneten Eindringtiefen d_p zeigt eine gute Übereinstimmung. Das Modell II (Zwei-Medien-Modell mit eingeschränktem Anpassungsbereich) repräsentiert die experimentellen Daten gut (Abbildung 3.9). Die experimentellen Daten verdeutlichen auch, wie sensitiv die Eindringtiefe von dem Brechungswinkel θ abhängt. Daher sollte in folgenden Experimenten nach einmaliger Justage der Einkoppelwinkel nicht mehr verändert werden. Ebenso sollte eine topographische Inhomogenität der Probenoberfläche unbedingt vermieden werden, da diese direkten Einfluss auf den Brechungswinkel und somit auf die resultierende Eindringtiefe hat.

4 Optisch gepumpte Laser mit verteilter Rückkopplung (DFB-Laser)

Laser mit verteilter Rückkopplung (DFB-Laser, engl.: **D**istributed-**F**eed**B**ack-Laser [3, 155]) arbeiten ohne herkömmliche Resonatoren: die Rückreflexion in das laseraktive Medium erfolgt an einer Struktur, die entweder permanent im Lasermedium vorhanden ist oder aber dynamisch induziert wird.

Einen möglichen Aufbau, eine verteilte Rückkopplung in einem Farbstofflasersystem zu erzielen, wurde 1979/80 von Z. Bor vorgestellt [156]. Er charakterisierte das Verhalten bei Temperatur- und Druckänderung [157, 158], modifizierte es durch den Einsatz eines holographischen Gitters und entwickelte ein Ratengleichungsmodell für das Lasersystem [159]. Dieses Ratengleichungsmodell wird in Abschnitt 4.2 vorgestellt und an das in dieser Arbeit verwendete System angepasst. Ein ähnliches Farbstofflasersystem wurde bereits in der Arbeitsgruppe realisiert und seine Eigenschaften numerisch simuliert [160–162]. Prinzipiell wird in diesem Lasersystem der Pumpstrahl mit Hilfe eines holographischen Gitters in zwei Teilstrahlen zerlegt, welche im aktiven Medium überlagert werden und interferieren: abhängig von der Geometrie der Überlagerung (Abschnitt 3.1.1.1) und der Verzögerung der Pulse der beiden Teilstrahlen (Abschnitt 3.1.1.2) bildet sich, je nach ihrer Intensität I_1 und I_2 , ein optisches Gitter mit Kontrast V (Abschnitt 3.1.1) aus. Das gittererzeugende Licht dient dabei gleichzeitig als Pumpquelle für den DFB-Laserbetrieb.

Das in dieser Arbeit untersuchte Lasersystem (Abschnitt 5) unterscheidet sich grundsätzlich von den vorangegangenen Systemen darin, dass

- a) die mit Farbstofflösung gefüllte Küvette durch einen laserfarbstoffdotierten Festkörper ersetzt wird und
- b) die Erzeugung der beiden Teilstrahlen durch Totalreflexionen innerhalb eines 90°-Prismas erfolgt. Durch die Einbettung des Farbstoffes in einen Festkörper wird eine Untersuchung der transienten, lichtinduzierten Strukturen mit einem optischen Nahfeldmikroskop erst möglich. Die eingesetzten Laserfarbstoffe und Festkörper werden im Abschnitt 4.1 bzw. 4.1.1 vorgestellt.

Einen Nachweis von permanenten Gitterstrukturen in Festkörpern und ihren Einsatz als DFB-Struktur konnten H. Kogelnik und C. V. Shank bereits 1971 anhand von farbstoffdotierten Gelatinefilmen zeigen. Sie induzierten durch die Bestrahlung mit ultraviolettem Licht eine feste Brechungsindexmodulation, was einen Laserbetrieb ohne externe Resonatoren ermöglichte [5]. Sie fanden heraus, dass der Rückkopplungsmechanismus aus der Braggstreuung des Pumplichtes an der räumlichen Modulation des Brechungsindex und/oder des Absorptionskoeffizienten resultiert. Einige Monate später präsentierten I. P. Kaminow et al. eine ähnliche Konfiguration anhand einer farbstoffdotierten Polymethyl-

methacrylat (PMMA)-Schicht [163]. Sie zeigten in diesem Experiment, dass eine Brechungsindexmodulation in kleinen Bereichen der gepumpten Fläche ausreicht, um einen stabilen Laserbetrieb zu erreichen. Dabei nutzten sie die von ihrem Kollegen W. J. Tomilson aufgezeigte Möglichkeit, eine Brechungsindexmodulation durch Bestrahlung mit ultravioletttem Licht in Polymethylmethacrylat zu induzieren [164].

Einen schematischen Überblick über verschiedene Beugungsexperimente zum Nachweis transients Gitter liefern H. J. Eichler et al. [131]: Der Nachweis von transienten Gittern erfolgt z.B. durch das Abtasten des Gitters mit einem weiteren Laserstrahl (Probestrahl), welcher auch über einen Strahlteiler aus einem der beiden Pumpstrahlen gewonnen werden kann oder durch Selbstbeugung der Pumpstrahlen. Der Nachweis des Gitters erfolgt allerdings indirekt durch die Auswertung des gebeugten Probestrahls. Die orts aufgelöste Auswertung ist durch den Strahldurchmesser des Probestrahls begrenzt.

Die direkte Messung des transienten, lichtinduzierten Gitters am laserfarbstoffdotierten Festkörper mit einem Nahfeldmikroskop während des DFB-Laserbetriebes ist Teil dieser Arbeit.

4.1 Laserfarbstoff Rhodamin 6G

Laserfarbstoffe¹ bilden das aktive Medium in Dauerstrich- oder gepulsten Farbstofflasern [166]. Laserfarbstoffe besitzen i.a. ein breites Emissionsspektrum von $\Delta\lambda \approx 30$ nm, wodurch die Farbstofflaser über einen großen Frequenzbereich kontinuierlich durchstimmbar sind. Derzeit stehen weit über 100 verschiedene organische Farbstoffe zur Verfügung, so dass durch geeignete Wahl Laserstrahlung in einem spektralen Bereich von $\lambda = 300$ nm bis $1,2 \mu\text{m}$ erzeugt werden kann [167]. Als Lösungsmittel werden üblicherweise Wasser oder organische Substanzen, z.B. Methanol oder Ethanol, eingesetzt. Die Einbettung in geeignete Festkörper wird in Abschnitt 4.1.1 diskutiert. Als Pumpquellen dienen Blitzlampen, gepulste oder kontinuierlich emittierende Laser.

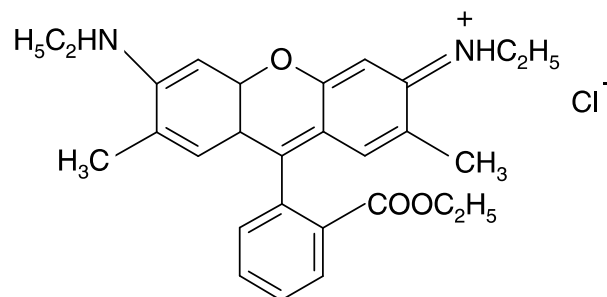


Abbildung 4.1: Strukturformel des Laserfarbstoffes Rhodamin 6G, Molekulargewicht $MW_{6G}=479$ g/mol.

¹ „The heart of any dye laser is the laser dye.“ (Lambdachrome Laser Dyes; Lambda Physik [165])

Bei den Laserfarbstoffen handelt es sich um mono- oder polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffverbindungen. Der im Rahmen dieser Arbeit eingesetzte Laserfarbstoff Rhodamin 6G (Abbildung 4.1) der Firma Lambda Physik AG [165] gehört zur Klasse der Xanthen-Farbstoffe [168].

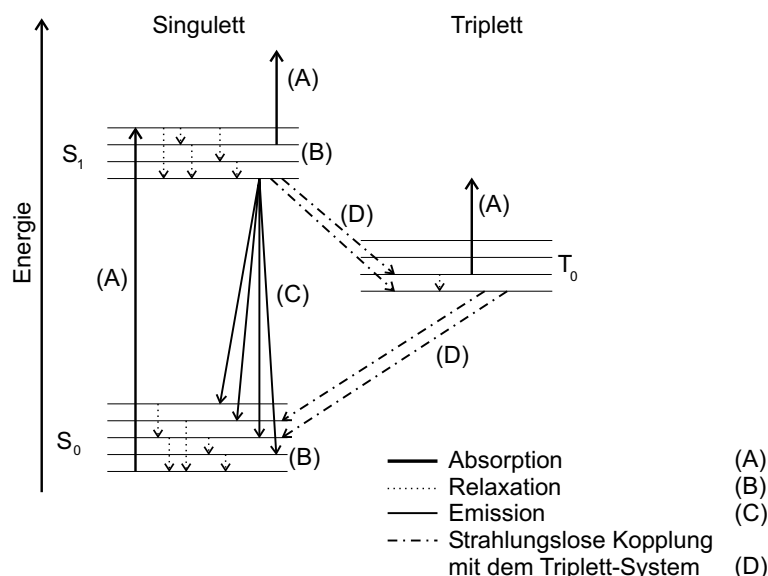


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des Termschemas des verwendeten Laserfarbstoffes. Die Abbildung ist [169] entnommen.

Die spektroskopischen Eigenschaften dieser Farbstoffe werden durch die schwach gebundenen π -Elektronen der Benzolringe geprägt [170]. Befindet sich das Molekül im Grundzustand, so liegen die π -Elektronen in einer geraden Anzahl vor und können paarweise zusammengefasst werden, wobei jedes Paar aus zwei Elektronen entgegengesetzten Spins besteht. Dadurch ist der Gesamtspin der Elektronen gerade Null. Jedes dieser Elektronen kann aus dem Grundzustand S_0 unter Spinerhaltung in einen höheren Singulettzustand S oder aber unter Spinänderung in einen Triplettzustand T angeregt werden. Diese Niveaus sind aufgrund von Stößen mit den Lösungsmittelmolekülen verbreitert. Die daraus resultierende breitbandige Fluoreszenz stellt ein Verstärkungsprofil dar, über das die Ausgangswellenlänge des Farbstofflasers mit Hilfe wellenlängenselektiver Elemente und einer geeigneten Kavität abgestimmt werden kann.

Die Lasertätigkeit wird durch ein vereinfachtes Termschema beschrieben (Abbildung 4.2): Durch die Absorption des Pumplichtes (A) erfolgt eine Anregung in ein S_1 -Niveau mit dem Wirkungsquerschnitt σ_p . Diese Niveaus bilden aufgrund der Stossverbreiterung im Lösungsmittel ein Kontinuum. Die angeregten Moleküle relaxieren strahlungslos innerhalb weniger Pikosekunden in das niedrigste S_1 -Niveau (B). So bildet sich in diesem Niveau während der Singulettlebensdauer τ_f eine erhöhte Populationsdichte aus. Von dort erfolgt die Besetzung der ebenfalls als Kontinuum vorliegenden Zustände des Grundzustandes S_0 unter Abgabe von Fluoreszenzphotonen (C). Die Fluoreszenzphotonen ermöglichen eine

induzierte Emission mit dem Wirkungsquerschnitt σ_e oder aber es erfolgt eine Reabsorption der Fluoreszenzphotonen (A) mit dem Wirkungsquerschnitt σ_a , wodurch Moleküle aus einem S_1 -Zustand in höhere S-Zustände angeregt werden.

Die Moleküle bilden demnach ein Drei-Niveau-System bestehend aus dem Grundzustand S_0 , den höheren Niveaus in S_1 und dem niedrigsten Niveau in S_1 . Ist die Pulsdauer des eingestrahlten Pumplichtes kürzer als die Fluoreszenzlebensdauer τ_f des ersten angeregten Singulett-Zustandes, kann die im niedrigsten Niveau des S_1 -Bandes aufgebaute Populationsdichte durch Gleichung 3.20 beschrieben werden. Die resultierende Änderung des Absorptionskoeffizienten $\Delta\alpha$ ergibt sich nach Gleichung 3.19 zu

$$\Delta\alpha = (\sigma_p - \sigma_a + \sigma_e)\Delta N . \quad (4.1)$$

In einigen Molekülen treten strahlungslose Übergänge in Triplett-Zustände T_0 (D) auf, was einen Verlustprozess darstellt. Beim Übergang zwischen dem Singulettsystem in das Triplettssystem ändert sich der Gesamtspin. Der erreichte Triplettzustand ist metastabil, da beim Übergang von diesem Zustand in den S_0 -Zustand wiederum eine Spinumkehr notwendig wird (Phosphoreszenz). Aufgrund der hohen Lebensdauer des Triplettzustandes von $\tau_T = 10^{-7}$ s bis 10^{-4} s ist ihre Bevölkerung unerwünscht, da diese Moleküle für die induzierte Emission (C) nicht mehr zur Verfügung stehen. Zusätzlich können bereits in Triplettzuständen befindliche Moleküle durch weitere Absorption (A) in höhere Triplettzustände angeregt werden, was die Lasereffizienz zusätzlich beeinträchtigt. In klassischen Farbstofflasersystemen kann diesem Effekt durch Umwälzen der Farbstofflösung oder durch Zugabe von sogenannten Triplett-Quenchern, welche die Besetzung der Triplett-Zustände durch Stöße abbauen, entgegengewirkt werden [161, 162].

Die Wirkungsquerschnitte σ_p , σ_a und σ_e wurden von O. Teschke et. al. [171] (Abbildung 4.3) und D. Magde et al. [172] (Abbildung 4.4) für Rhodamin 6G in Ethanol durch Beugungsexperimente bestimmt.

Derzeit liegen keine Daten für die Wirkungsquerschnitte σ_p , σ_a und σ_e von Rhodamin 6G in den untersuchten Trägermaterialien (Abschnitt 4.1.1) vor, da ihre Bestimmung aufgrund des Ausbleichens des Farbstoffes erschwert wird. Daher erfolgt eine Abschätzung der Änderung des Absorptionskoeffizienten $\Delta\alpha$ nach Gleichung 4.1 und eine Abschätzung der Änderung des Brechungsindex Δn nach Gleichung 3.21 (Abschnitt 3.2.1 und Anhang 9.1) mit den vorliegenden Datensätzen. Die Bestimmung der Wirkungsquerschnitte σ_p , σ_a und σ_e in verschiedenen Trägermaterialien ist Bestandteil der aktuellen Forschung [173]. Bei einer Anregung der Farbstofflösung mit polarisiertem Licht wird diese dichroitisch und doppelbrechend: die Farbstoffmoleküle werden vorzugsweise angeregt, wenn das Dipolmoment $\vec{\mu}$ parallel zum elektrischen Feld \vec{E} des eingestrahlten Lichts ist [174]. Wird eine isotrope Orientierungsverteilung $\rho(t)$ der Moleküle im Grundzustand angenommen, so folgt für die zeitliche Änderung der Orientierungsverteilung der angeregten Moleküle bzw. die Anregungsrate aufgrund einer schwachen Anregung mit einem elektrischem Feld $\vec{E} = \vec{E}_1 + \vec{E}_2$ nach Gleichung 3.2 bzw. 3.3:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} \sim \frac{N_0}{4\pi} |\vec{\mu} \cdot \vec{E}|^2 . \quad (4.2)$$

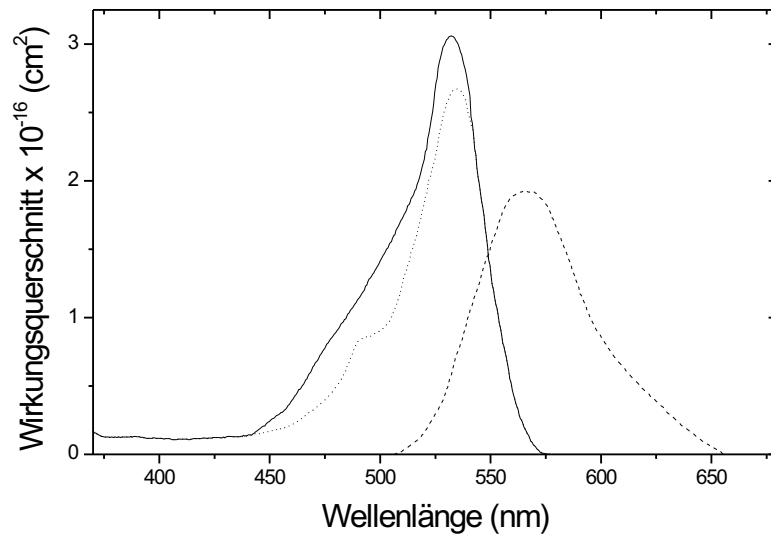


Abbildung 4.3: Daten der Wirkungsquerschnitte σ_p (Punkte), σ_a (Linie) und σ_e (Striche) für Rhodamin 6G in Ethanol nach O. Teschke et. al. [171] nach [135].

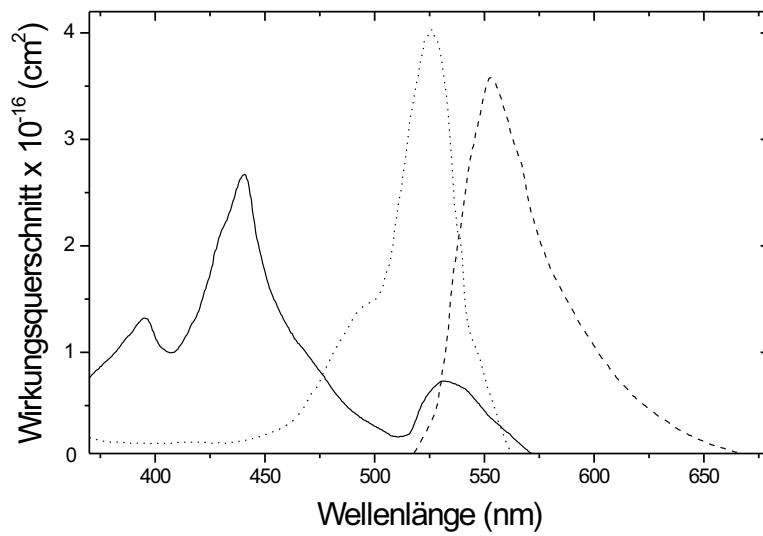


Abbildung 4.4: Daten der Wirkungsquerschnitte σ_p (Punkte), σ_a (Linie) und σ_e (Striche) für Rhodamin 6G in Ethanol nach D. Magde et. al. [172] nach [135].

Mit $\alpha = \angle(\vec{\mu}, \vec{E})$ und Gleichung 3.5 folgt²:

$$|\vec{\mu} \cdot \vec{E}|^2 = |\mu|^2 I^2 \cos^2 \alpha . \quad (4.3)$$

Ist die Pulsdauer τ_p des anregenden, gitterinduzierenden Feldes $\vec{E} = \vec{E}_1 + \vec{E}_2$ kleiner als die Orientierungsrelaxationszeit $\tau_{or} = (6D)^{-1}$ und die Lebensdauer im ersten angeregten Singulettzustand τ_f , wird das zeitliche Verhalten der Orientierungsverteilung $\rho(t)$ über die Rotationsdiffusionsgleichung beschrieben [131]:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = D \nabla^2 \rho - \frac{1}{\tau_f} \rho . \quad (4.4)$$

Dabei bezeichnet D die Rotationsdiffusionskonstante. Für einfache Moleküle gilt:

$$\tau_{or} = \eta_v V / kT . \quad (4.5)$$

Dabei bezeichnet η_v die Viskosität, T die Temperatur der Lösung und V das Volumen des Moleküls [131]. Die Orientierung des Moleküls zur Polarisationsrichtung des eingestrahnten Lichtfeldes spiegelt sich bei der Bestimmung von Wirkungsquerschnitten von Farbstoffen an Einzelmolekülen in festen Trägermaterialien wieder (z.B. [175]): eine Bestimmung erfolgt daher statistisch an einer großen Anzahl von Einzelmolekülen, wobei der größte bestimmte Wirkungsquerschnitt, die „untere Schranke für den Betrag des Querschnitts darstellt“ [173].

4.1.1 Trägermaterialien für Laserfarbstoffe

In klassischen Farbstofflasersystemen kommen üblicherweise flüssige Lösungsmittel zum Einsatz [176], welche transparent für die Pump- und Laserwellenlänge sind und eine hohe Photostabilität besitzen. Die Wahl des Lösungsmittels und der Farbstoffkonzentration hat deutlichen Einfluss auf die Wellenlänge und Ausgangsleistung des Farbstofflasers: Eine Anregung des Farbstoffes in den ersten Singulett-Zustand (Abbildung 4.2) bewirkt eine Vergrößerung des Dipolmoments. Wird ein polares Lösungsmittel eingesetzt, so wird die Verstärkungskurve des Farbstoff-Lösungsmittel-Systems zu größeren Wellenlängen verschoben (Rotverschiebung). Höhere Farbstoffkonzentrationen ergeben eine schwache Rotverschiebung, niedrigere eine Blauverschiebung [165]³. Beim Einsatz von Farbstofflösungen im Nahen-Infrarot und Infrarot muss bei der Wahl des Lösungsmittels beachtet werden, dass Hydroxylgruppen in diesem Spektralbereich absorbieren (Vibrationsüberschwingungen) und so mit dem Laserprozess konkurrieren können.

Der Einsatz von Festkörpern als Trägermaterialien von Laserfarbstoffen wurde bereits 1967 von B. H. Soffer und B. B. McFarland untersucht und die möglichen Vorteile gegenüber

²Aus folgender Gleichung wird ebenfalls deutlich, dass auch dann ein optisches Gitter entsteht, wenn die beiden Pumpstrahlen senkrecht zueinander stehen (Abschnitt 3.1.1.)

³Als Farbstofflösungen werden 10^2 bis 10^5 molare Lösungen verwendet.

einer flüssigen Farbstofflösung vorgestellt [177]: es bilden sich keine Konvektionsschlieren innerhalb des gepumpten Volumens aus und es sind keine Zellen mehr nötig, welche eine Verdunstung des Lösungsmittels verhindern sollen. Die Einbettung der Farbstoffe in Festkörperschichten ermöglicht auch die nahfeldmikroskopische Untersuchung von lichtinduzierten Strukturen und ihren Einfluss auf die Farbstoffe.

Die im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten und im Folgenden vorgestellten Festkörpermatrizen auf Sol-Gel-Basis und Polymethylmethacrylat (PMMA) erlauben eine Einlagerung von laseraktiven Farbstoffen. Die Schichtenherstellung erfolgt mit einem im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten Spin-Coater. Die Präparation der Prismen ist in Abschnitt 5.3.2 erläutert.

4.1.1.1 Sol-Gel

Als mögliche Festkörpermatrix für die Einlagerung von laseraktiven Farbstoffen kann ein SiO_2 -Netzwerk dienen, welches mit Hilfe der Sol-Gel-Methode hergestellt wird.

Als Sol wird eine kolloidale Lösung bezeichnet, in der ein fester oder flüssiger Stoff in hoher Verteilung in einem festen, flüssigen oder gasförmigen Stoff dispergiert ist [168]. Flüssige Dispersionsmedien werden als Lyosole bezeichnet, welche weiter in Organosole, wenn sich die Suspension in organischer, und Hydrosole, wenn sich die Suspension in wässriger Phase befindet, unterteilt werden. Ein Sol kann durch Koagulation in ein Sol-Gel übergehen. Das Verhalten wird durch die Kolloidchemie beschrieben [168].

Als Ausgangsmaterial für die SiO_2 -Schichten wurde in dieser Arbeit Tetraethoxysilan (TEOS, $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$) eingesetzt, welches unter sauren Bedingungen zu Kieselsäure hydrolysiert wird. Die Kieselsäure kondensiert unter Abgabe von Wasser zu einem nanoporösen SiO_2 -Netzwerk [178].

Einsatz findet die Sol-Gel-Methode u.a. bei der Tauchbeschichtung von großflächigen, ggf. gekrümmten Glasflächen zur kostengünstigen, umweltfreundlichen Antireflexbeschichtung, z.B. für Sonnenkollektoranlagen [179].

Auf Basis der von G. Hellsch [179] untersuchten Sol-Gel-Kompositionen und der von X.-l. Zhu und D. Lo vorgestellten Laser mit verteilter Rückkopplung auf Basis von farbstoffdotiertem Sol-Gel [180] werden verschiedene Sol-Gel-Zusammensetzungen bezüglich ihres Einsatzes als Trägermatrix für Laserfarbstoffe von A. Steinmann untersucht [181].

Die Zusammensetzungen der im Folgenden hinsichtlich ihrer Oberflächenrauigkeit, der Schichtdicke und der Dauer der Laseraktivität untersuchten Schichten werden in Abschnitt 6 dargestellt.

4.1.1.2 Polymethylmethacrylat

Polymethylmethacrylat (PMMA, Abbildung 4.5) ist ein Kunststoff und gehört in die Gruppe der thermoplastischen Polymere und dort in die Untergruppe der Polymethacrylate [168].

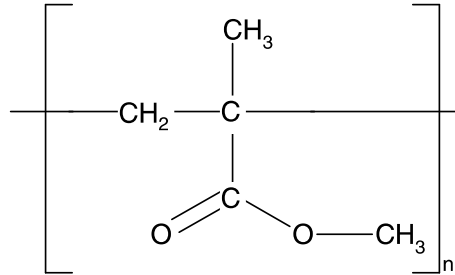


Abbildung 4.5: Strukturformel von Polymethylmethacrylat (PMMA). Das Molekulargewicht einer Einheit beträgt $MW_{\text{PMMA}} = 100 \text{ g/mol}$. n bezeichnet die Kettenlänge des Makromoleküls.

Die Herstellung erfolgt durch radikalische Polymerisation von Methacrylsäuremethylestern bei hohen Temperaturen⁴. Als Thermoplaste werden kettenförmig eindimensional aufgebaute Makromoleküle bezeichnet. Vernetzte dreidimensional aufgebaute Makromoleküle, sogenannte Raumnetzwerk-moleküle, werden unter den Begriffen Duroplaste oder Elastomere zusammengefasst. Bei den Thermoplasten dominieren die Nebenvalenzkräfte, welche durch Temperatureinwirkung bis zum Fließtemperaturbereich aufgehoben werden können [182]. Die Molekülketten sind dann frei beweglich. Die Nebenvalenzkräfte sind intermolekulare Kräfte. Dazu gehören die:

- Dispersionskräfte, die dadurch entstehen, dass die sich um die positiven Atomkerne bewegendenden Elektronen ständig wechselnde negative Schwerpunkte erzeugen. Diese erzeugen in den Nachbaratomen Gegenpole.
- Dipolkräfte, die entstehen, wenn im Kettenmolekül Elemente starken elektronegativen Charakters (z.B.: Chlor in PVC) vorhanden sind. Diese Dipole wirken auf benachbarte Ketten.
- Induktionskräfte, die zusätzlich zu den Dipolkräften entstehen, wenn durch die Feldwirkung die Elektronenhüllen benachbarter Atomgruppen verzerrt werden.
- Wasserstoffbrückenkräfte, die auftreten, wenn Wasserstoffatome von speziellen Atomgruppen positiv polarisiert werden und dann mit negativen Elementen der Nachbarkette eine elektrostatische Anziehung hervorrufen. Typische Atomgruppen sind alkoholische Hydroxylgruppen oder Amidgruppen.

⁴Videoanimationen der Polymerisation z.B. unter <http://www.psrc.usm.edu/macrog/radical.htm>

Polymethylmethacrylat zeigt gute Löslichkeit in Benzol, Methylenchlorid, Chloroform, Aceton, Äthylacetat und Chlorbenzol und ist bei Raumtemperatur beständig gegen schwache Säuren und Laugen, Salzlösungen, unpolare Lösungsmittel, Fette, Öle und Wasser. Durch Zusatz- und Hilfsstoffe, wie Weichmacher, Stabilisatoren, Farbmittel, Antistatika, Verstärkungsstoffe, Treibmittel, Füllstoffe und flammhemmende Zusätze, können die Eigenschaften des Kunststoffs dem jeweiligen Anwendungsbereich angepasst werden. Die Dichte von Polymethylmethacrylat liegt zwischen $\rho = 0,4 \text{ g/cm}^3$ bis $\rho = 0,936 \text{ g/cm}^3$ [182]. Die Zündtemperatur beträgt $T_Z = 425 \text{ °C}$ [182].

Die optischen Eigenschaften von Polymethylmethacrylat sind eine hohe Härte und Steifigkeit, eine hohe Transparenz im sichtbaren Bereich sowie eine hohe UV-Transparenz und Photostabilität. Die Transmission T liegt im Wellenlängenbereich $\lambda = 380 \text{ nm}$ bis $\lambda = 780 \text{ nm}$ oberhalb von 90 %. Der Brechungsindex beträgt $n = 1,49$ für $\lambda = 532 \text{ nm}$. Aufgrund seiner optischen Eigenschaften wird Polymethylmethacrylat als Werkstoff für optische Komponenten, wie z.B. Linsen, Prismen oder biegsame Lichtwellenleiter eingesetzt [183].

Polymethylmethacrylat kann in unterschiedlichsten Formen kommerziell bezogen oder selbst durch oben genannte Polymerisation⁵ hergestellt werden. Die optischen Eigenschaften von eingelagerten Laserfarbstoffen, insbesondere Rhodamin 6G, wurde in Polymethylmethacrylat definierter Polymerkettenlänge im Rahmen dieser Arbeit untersucht [185]. Dazu wurden vom Hersteller⁶ spezifizierte Polymethylmethacrylate mit den Molekulargewichten $MW=25000$, $MW=100000$ und $MW=350000$, in Granulatform erworben. Damit das Granulat mit Farbstoff dotiert werden kann, muss ein Lösungsmittel eingesetzt werden, welches sowohl den Farbstoff als auch das Polymethylmethacrylat hinreichend schnell löst. Dazu wurden verschiedene Lösungsmittel und Mischungen von T. Voß untersucht [169]: Ein geeignetes Lösungsmittel ist Chloroform (CHCl_3). Zur weiteren Untersuchung wurden Schichten hergestellt, indem einige Tropfen dieser Lösung jeweils auf Glasträger oder auf BK7-Glasprismen mit einem Spin-Coater aufgeschleudert wurden. Zur Präparation der Prismen sei auf Abschnitt 5.3.2 verwiesen.

4.2 Ratengleichungsmodell

Das von Z. Bor 1980 vorgestellte Ratengleichungsmodell für einen Farbstofflaser mit verteilter Rückkopplung [159] bildet die Grundlage für das in dieser Arbeit untersuchte Festkörper-DFB-System. Eine Software zur numerischen Simulation des Systems wurde bereits von J. Schaaf in der Arbeitsgruppe entwickelt [160]. Das Modell wurde bezüglich der dünnen, dotierten Festkörperschichten und der Pumpgeometrie angepasst und die Software modifiziert.

Das Prinzip der verteilten Rückkopplung durch ein transientes optisches Gitter basiert auf

⁵Fertige Kits können auch kommerziell erworben werden, z.B. von der Firma Polyscience, Inc. [184].

⁶Polyscience, Inc.

der partiellen Reflexion der durch stimulierte Emission erzeugten Photonen innerhalb der Gitterstruktur. Durch diese sogenannte Bragg-Reflexion entsteht eine nach links und eine nach rechts laufende Welle. Eine effektive Kopplung der Wellen tritt jedoch nur dann auf, wenn die teilweise reflektierten Wellen konstruktiv interferieren, d.h., wenn die Braggbedingung (Gleichung 3.25)

$$\lambda_{\text{DFB,Luft}} = n\lambda_{\text{DFB,Medium}} = 2n\Lambda \quad (4.6)$$

erfüllt ist. Dabei bezeichnet n den Brechungsindex des Mediums, in welchem das Gitter mit Streifenabstand Λ induziert wird. Die DFB-Wellenlänge kann durch Variation des Brechungsindex n und/oder durch Variation des Streifenabstandes Λ gezielt verstimmt werden; dies wurde in der Arbeitsgruppe sowohl für Laser mit Farbstofflösung als auch für Festkörpersysteme gezeigt [4, 161, 162, 169].

Das folgende Gleichungssystem beschreibt das Ratengleichungsmodell für Farbstofflaser mit verteilter Rückkopplung nach Z. Bor [159]:

$N(t)$	Dichte der Farbstoffmoleküle im ersten angeregten Singulett-Zustand
$Q(t)$	Dichte der Photonen im DFB-Resonator
$\tau_c(t)$	mittlere Aufenthaltsdauer der Photonen im Resonator
$P(t)$	Ausgangsleistung des DFB-Lasers
$I_p(t)$	räumlich gemittelte Pumpphotonendichte pro Flächeneinheit
$\delta n(t)$	Amplitude der räumlichen Brechungsindexmodulation
$\delta\alpha(t)$	Amplitude der Verstärkungsmodulation
$T(t)$	Temperatur des laseraktiven Mediums

Tabelle 4.1: Erläuterung der zeitabhängigen Variablen der Gleichungen (4.7)-(4.12).

$$\frac{dN(t)}{dt} = \underbrace{I_p(t) \cdot \sigma_p \cdot (N_0 - N(t))}_{\text{Absorption}} - \underbrace{\frac{\sigma_e \cdot c}{n} \cdot N(t) \cdot Q(t)}_{\text{induzierte Emission}} - \underbrace{\frac{N(t)}{\tau_f}}_{\text{spontane Emission}} \quad (4.7)$$

$$\frac{dQ(t)}{dt} = \underbrace{\frac{(\sigma_e - \sigma_a) \cdot c}{n} \cdot N(t) \cdot Q(t)}_{\text{induzierte Emission und Reabsorption}} - \underbrace{\frac{Q(t)}{\tau_c}}_{\text{ausgekoppelter Anteil}} + \underbrace{\frac{\Omega \cdot N(t)}{\tau_f}}_{\text{spontane Emission}} \quad (4.8)$$

$$\tau_c(t) = \frac{n \cdot L^3}{2 \cdot c \cdot \pi^2} \left[\underbrace{\left(\frac{\pi}{\lambda_{\text{DFB}}} \cdot \delta n(t) \right)^2}_{\text{Modulation des Brechungsindex}} + \underbrace{\left(\frac{1}{2} \cdot \delta\alpha(t) \right)^2}_{\text{Modulation der Verstärkung}} \right] \quad (4.9)$$

$$\delta\alpha(t) = (\sigma_e - \sigma_a) \cdot V \cdot N(t) \quad (4.10)$$

$$\delta n(t) = \frac{\partial n}{\partial T} \cdot \Delta T(t) \quad (4.11)$$

$$P(t) = \frac{h \cdot c \cdot Q(t)}{2 \cdot \lambda \cdot \tau_c} \cdot L \cdot a \cdot b \quad (4.12)$$

Gleichung 4.7 beschreibt die zeitliche Änderung der Dichte der Farbstoffmoleküle im ersten angeregten Singulett-Zustand S_1 , welche durch die Absorption der Pumpphotonen $I_p(t)$ mit dem Absorptionsquerschnitt σ_p durch die im Grundzustand S_0 befindlichen Moleküle ($N_0 - N(t)$) bestimmt wird. $I_p(t)$ beschreibt den zeitlichen Verlauf der Pumpphotonendichte pro Flächeneinheit:

$$I_p(t) = \frac{E}{h \nu_p} \frac{1}{L b} \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{t-t_0}{2\sigma}} \quad (4.13)$$

mit $\sigma = \Delta t / \sqrt{8 \ln 2}$. b bezeichnet die Breite und L die Länge des gepumpten Volumens, E die Pulsenergie und ν_p die Pumpwellenlänge. Die bereits im DFB-Resonator befindlichen Photonen $Q(t)$ können mit dem Wirkungsquerschnitt σ_e eine induzierte Emission der angeregten Moleküle $N(t)$ hervorrufen. Eine weitere Reduktion der Farbstoffmoleküle im ersten angeregten Singulett-Zustand erfolgt durch die spontane Emission eines Fluoreszenzphotons durch ein angeregtes Molekül mit der Lebensdauer τ_f .

Die zeitliche Änderung der Anzahl der Dichte der Laserphotonen im Resonator $Q(t)$ wird durch Gleichung 4.8 beschrieben und ergibt sich aus der induzierten Emission mit dem Wirkungsquerschnitt σ_e und der Reabsorption in höhere angeregte Singulett-Zustände mit dem Wirkungsquerschnitt σ_a . Beide Prozesse sind proportional zur Dichte der Photonen im DFB-Resonator $Q(t)$. Aufgrund der Verweildauer der Photonen im Resonator bzw. der Resonatorlebensdauer τ_c verringert sich die Photonendichte. Einen positiven Beitrag zur Photonendichte liefert die spontane Emission von Fluoreszenzphotonen durch angeregte Moleküle mit der Lebensdauer τ_f , welche sowohl in der räumlichen Orientierung mit dem Resonator als auch mit der DFB-Wellenlänge nach Gleichung 4.6 zusammenfallen. Diese Randbedingungen werden durch folgende Gleichung erfasst:

$$\Omega = \frac{ab}{\pi S L^2} \quad (4.14)$$

a beschreibt die Eindringtiefe des Pumplichtes in die Farbstofflösung:

$$a = \alpha^{-1} = \frac{1}{N \sigma_p} \quad (4.15)$$

α bezeichnet den Absorptionskoeffizienten und S das Verhältnis des DFB-Emissionsbereichs zum Gesamtfluoreszenzbereich des verwendeten Farbstoffes.

Während das System aus den Gleichungen 4.7 und 4.8 auf verschiedene Lasertypen anwendbar ist, beschreibt Gleichung 4.9 die mittlere Aufenthaltsdauer der DFB-Photonen im lichtinduzierten Resonator mit verteilter Rückkopplung. Diese wird bestimmt durch den Einfluss der Pumpstrahlung auf den Brechungsindex des Lösungsmittels n und auf den Absorptionskoeffizienten des Farbstoffes α . Dabei wird vorausgesetzt, dass der Absorptionskoeffizient des Lösungsmittels gegenüber dem Absorptionskoeffizienten des Farbstoffes vernachlässigbar ist. Die resultierende Modulation des Brechungsindex $\delta n(t)$ wird durch einen Temperaturgradienten nach Gleichung 4.11 induziert [159]. Die induzierte Modulation des Absorptionskoeffizienten α bewirkt eine Modulation der Verstärkung $\delta \alpha(t)$ nach

Gleichung 4.10, welche proportional zum Kontrastverhältnis nach Gleichung 3.10 ist. Während in dem von Z. Bor vorgestellten DFB-Farbstofflaseraufbau die Schichtdicke d der Farbstofflösung groß im Vergleich zu der Eindringtiefe des Pumplichtes a in die Schicht ist (Gleichung 4.15), kann diese Näherung auf den im Folgenden verwendeten Aufbau (Abschnitt 5) nicht angewendet werden: es liegen Schichtdicken in der Größenordnung der Eindringtiefe nach Gleichung 4.15 vor und es findet eine Totalreflexion an der Grenzfläche des aktiven Mediums zu Luft statt. Die Eindringtiefe a wird über eine Stufenfunktion genähert und berechnet sich aus der maximalen Pumpintensität I_{\max} und der Intensitätsverteilung $I(z)$ innerhalb der Schicht, welche über das Beer-Lambertsche Gesetz (siehe beispielsweise [186]) beschrieben wird:

$$a_{\text{eff}} = \frac{I(z)}{I_{\max}} = \int_0^{2d} e^{-x \sigma_p N} dx = \frac{1}{N \sigma_p} \left(1 - e^{-2d \sigma_p N} \right) . \quad (4.16)$$

Die Integrationsgrenze $2d$ resultiert aus der Totalreflexion an der Prismenunterseite. Die Intensitätsverteilung ohne (gestrichelte Linie) und mit Totalreflexion (durchgezogene Linie) ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Im Folgenden wird $a = a_{\text{eff}}$ gesetzt.

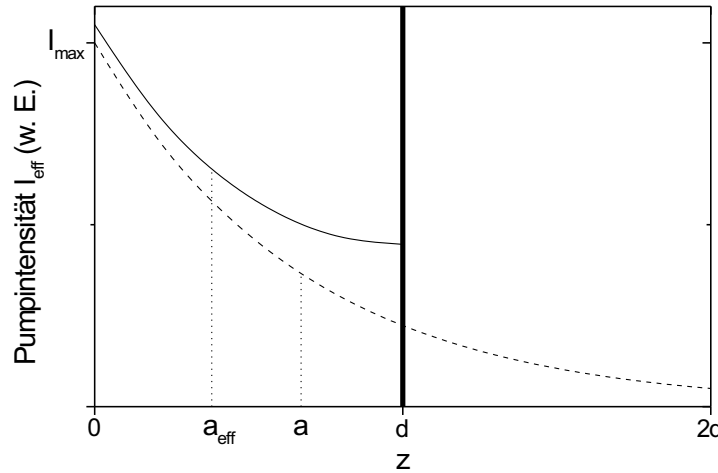


Abbildung 4.6: Intensitätsverteilung $I(z)$ innerhalb einer Farbstoffschicht der Dicke d bei Auftreten einer Totalreflexion bei $z=d$ (durchgezogene breite Linie). Die Intensitätsverteilung $I(z)$ für eine Schicht der Dicke $d \gg a$ ist als gestrichelte Linie dargestellt. $z = 0$ bezeichnet die Grenzfläche Prisma-aktive Schicht, $z = d$ die Grenzfläche aktive Schicht-Luft. a_{eff} und a bezeichnen die Eindringtiefen des jeweiligen Systems.

Gleichung 4.12 ermöglicht schließlich eine Berechnung der Ausgangsleistung $P(t)$ des DFB-Lasers.

5 Microchiplaser gepumpter DFB- Prismen-Laser

Auf Basis der in Abschnitt 4 dargestellten Funktionsweise von optisch gepumpten Lasern mit verteilter Rückkopplung wird eine Konfiguration vorgestellt und diskutiert, welche die optische Induktion eines Gitters in einer farbstoffdotierten Festkörperschicht über ein 90°-Prisma durch einen einzelnen gepulsten Pumpstrahl ermöglicht.

Da die Farbstoffmoleküle im Pumpvolumen nicht umgewälzt werden können, ist der Effekt des optischen Ausbleichens (engl.: photobleaching) nicht vernachlässigbar. Vielmehr ist das Auftreten des optischen Ausbleichens der begrenzende Faktor während der zeitintensiven, parallelen Justage des DFB-Systems (Abbildung 5.11), des optischen Nahfeldmikroskops (Abbildung 5.12), der Streakkamera und des Monochromators (Abschnitt 5.2). Zur Reduktion der Wiederholrate wird daher ein akusto-optischer Modulator verwendet (Abschnitt 5.3.1), welcher zudem eine Einzelpulsauswertung des Pump- und des DFB-Signals mit Hilfe der Streakkamera ermöglicht. Da in vorherigen Experimenten zur Bestimmung des optischen Auflösungsvermögens (Abschnitt 3.4) Dauerstrich-Lasersysteme eingesetzt wurden, ist eine geeignete Anpassung der optischen Auswertung durch das optische Nahfeldmikroskop für niedrige Laserpuls-Wiederholraten notwendig, welche in Abschnitt 5.2.1 dargestellt wird.

5.1 Theoretisches Modell

Für den Streifenabstand Λ des induzierten Gitters gilt nach Gleichung 3.1 und den Bezeichnungen in Abbildung 5.1:

$$\Lambda = \frac{\lambda_p}{2 n_3 \sin \theta} \quad . \quad (5.1)$$

λ_p bezeichnet die Wellenlänge des Pumplichtes in Luft, n_3 bezeichnet den Brechungsindex der auf das Prisma aufgeschleuderten, farbstoffdotierten Schicht. Für den Streifenabstand Λ folgt nach geometrischen Überlegungen und Anwendung des Gesetzes von Snellius (Gleichung 3.29) für die Brechungen an den Grenzflächen $n_1 \rightarrow n_2$ und $n_2 \rightarrow n_3$:

$$\Lambda = \frac{\lambda_p}{\sqrt{2} \left(n_1 \sin \alpha + n_2 \sqrt{1 - \frac{n_1^2 \sin^2 \alpha}{n_2^2}} \right)} \quad . \quad (5.2)$$

Bei dieser Betrachtung ist zu beachten, dass ein Gitter nur in die Schicht induziert wird, wenn an der Prismenrückseite R eine Totalreflexion des einfallenden Strahls B erfolgt und der einfallende Strahl A nicht an der Grenzfläche $n_2 \rightarrow n_3$ total reflektiert wird. Zusätzlich sollte an der Grenzfläche $n_3 \rightarrow n_1$, d.h. an der Unterseite des Prismas, eine Totalreflexion

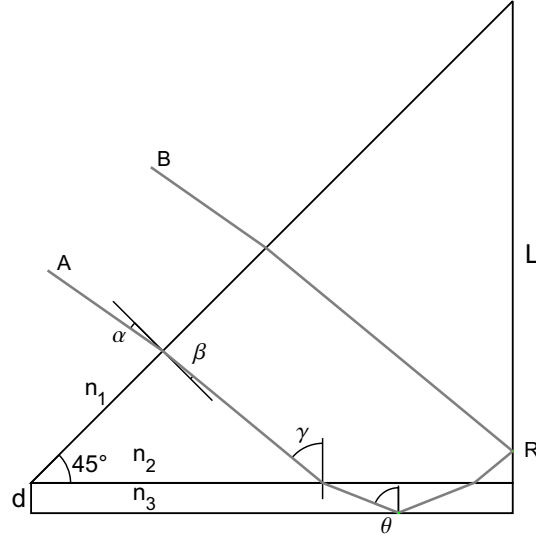


Abbildung 5.1: Strahlengang innerhalb des beschichteten 90°-Prismas mit der quadratischen Grundfläche $A = L^2$. $n_1 = 1$ bezeichnet den Brechungsindex der Umgebungsluft, $n_2 = 1,7946$ bezeichnet den Brechungsindex des BK7-Glas-Prismas bei der Pumpwellenlänge $\lambda_p = 532$ nm. n_3 bezeichnet den Brechungsindex der auf das Prisma aufgeschleuderten, farbstoffdotierten Schicht der Dicke d . Die Winkel α , β , γ und θ bezeichnen die Einfalls- bzw. Brechungswinkel, gemessen zum Lot.

erfolgen:

- a) Durch diese Totalreflexion durchstrahlt die Pumpstrahlung das Pumpvolumen zweifach, wodurch die Pumpschwelle des Systems verringert wird.
- b) Die Totalreflexion ermöglicht eine streulichtreduzierte Detektion des evaneszenten Anteils des induzierten Gitters.

Durch die beteiligten Grenzflächen und die genannten Randbedingungen resultiert ein Parameterraum für α , n_1 , n_2 und n_3 : Damit an der Grenzfläche $n_2 \rightarrow n_3$, keine Totalreflexion auftritt, ist der Einkoppelwinkel α kleiner als der Winkel $\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_3}$ zu wählen:

$$\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_3} = \arcsin \left[\frac{n_2}{n_1} \frac{\sqrt{2}}{2} \left(\frac{n_3}{n_2} - \sqrt{1 - \frac{n_3^2}{n_2^2}} \right) \right] . \quad (5.3)$$

Damit an der Prismenrückseite, d.h. die Grenzfläche $n_2 \rightarrow n_1$, eine Totalreflexion realisiert wird und somit das reflektierte Licht zur Gittererzeugung in der Schicht zur Verfügung steht, ist der Einkoppelwinkel α kleiner als der Winkel $\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1}$ zu wählen:

$$\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1} = \arcsin \left[\frac{n_2}{n_1} \sin \left\{ \arccos \left(\frac{n_1}{n_2} \right) - \frac{\pi}{4} \right\} \right] . \quad (5.4)$$

Um eine Totalreflexion an der Grenzfläche $n_3 \rightarrow n_1$, d.h. an der Prismenunterseite, zu

gewährleisten, ist der Einkoppelwinkel α größer als der Winkel $\alpha_{\min, n_3 \rightarrow n_1}$ zu wählen:

$$\alpha_{\min, n_3 \rightarrow n_1} = \arcsin \left[\frac{\sqrt{2}}{2} \left(1 - \sqrt{\frac{n_2^2}{n_1^2} - 1} \right) \right] . \quad (5.5)$$

Es ist zu beachten, dass $\alpha_{\min, n_3 \rightarrow n_1}$ unabhängig vom Brechungsindex n_3 ist. Mit Hilfe bekannter Beziehungen zwischen den inversen trigonometrischen Funktionen (siehe beispielsweise [187]) lässt sich sofort zeigen:

$$\alpha_{\min, n_3 \rightarrow n_1} = -\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1} . \quad (5.6)$$

Im Folgenden wird die Brechungsindexkonfiguration $n_1 = 1$, $n_2 = 1,7946$ und $n_3 = 1,49$ und der Laserfarbstoff Rhodamin 6G verwendet. Aufgrund des höheren Brechungsindex des Prismenmaterials ($n_2 = 1,7946$) und des niedrigeren Brechungsindex $n_1 = 1$ können in der Schicht ($n_3 = 1,49$) Substratmoden anschwingen. Wird Quarzglas ($n_2 = 1,46$) als Prismenmaterial verwendet, ergibt sich aufgrund des höheren Brechungsindex der Schicht $n_3 = 1,49$ und des niedrigeren Brechungsindex $n_1 = 1$ eine Wellenleiterstruktur. Diese Struktur lässt eine bessere Verstärkung und eine niedrigere Pumpschwelle bei kleinerem Durchstimmbereich des Systems erwarten. Das spektrale Verhalten bei dem Einsatz von Quarzglas als Prismenmaterial wurde von T. Voss [169] untersucht: er berechnete eine mögliche Emissionswellenlänge von $\lambda_{\text{DFB}} \approx 790$ nm und als Laserfarbstoffe wurden Pyridin 2 und Styryl 8 eingesetzt. Diese Farbstoffe zeigten jedoch in Experimenten eine niedrige Effizienz und Stabilität und es konnte keine Laseraktivität bei Einsatz des Microchiplasers als Pumpquelle detektiert werden.

Abbildung 5.2 zeigt die Abhängigkeit des Winkels $\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_3}$ vom Brechungsindex n_3 mit den Brechungsindizes $n_1 = 1$ und $n_2 = 1,7946$. Zusätzlich ist der Winkel $\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1}$ gestrichelt dargestellt. Es wird deutlich, dass für Brechungsindizes $n_3 > n_3(\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1}) = 1,49$ der aufgetragenen Schicht das Durchstimmverhalten des Systems durch die Totalreflexion an der Prismenrückseite, d.h. durch den Winkel $\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1}$, begrenzt wird. Die Abhängigkeit des Winkels θ ist beispielhaft für eine Prismenkonfiguration mit $n_1 = 1$, $n_2 = 1,7946$ und $n_3 = 1,49$ für eine PMMA-Schicht in Abbildung 5.3 dargestellt.

Die korrespondierenden Grenzwinkel $\alpha_{\min, n_3 \rightarrow n_1} = -20,28^\circ$ (blaue Linie) und $\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_3} = 20,26^\circ$ (rote Linie) nach Gleichung 5.5 bzw. 5.3 korrespondieren nach Gleichung 5.1 bzw. 5.2 mit dem Streifenabstand Λ des induzierten Gitters. Über die Braggbedingung (Gleichung 4.6 mit $n = n_3$) ist die resultierende Ausgangswellenlänge $\lambda_{\text{DFB, Luft}}$ des DFB-Systems mit dem Streifenabstand verknüpft. Die Winkel $\alpha_{\min, n_3 \rightarrow n_1}$ und $\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_3}$ bewirken demnach einen maximalen bzw. minimalen Streifenabstand Λ_{\max} bzw. Λ_{\min} sowie eine maximale bzw. minimale Ausgangswellenlänge $\lambda_{\text{DFB, Luft, max}}$ bzw. $\lambda_{\text{DFB, Luft, min}}$. Es ergibt sich mit den Brechungsindizes $n_1 = 1$, $n_2 = 1,7946$ und $n_3 = 1,49$ und einer Pumpwellenlänge $\lambda_p = 532$ nm für den minimalen und maximalen Streifenabstand: $\Lambda_{\min} = 148,22$ nm und $\Lambda_{\max} = 220,85$ nm. Für die korrespondierenden DFB-Laserwellenlängen folgt: $\lambda_{\text{DFB, Luft, min}} = 441,70$ nm und $\lambda_{\text{DFB, Luft, max}} = 658,13$ nm. Das Verhalten des Streifenabstandes Λ für diese Konfiguration ist in Abbildung 5.4 dargestellt.

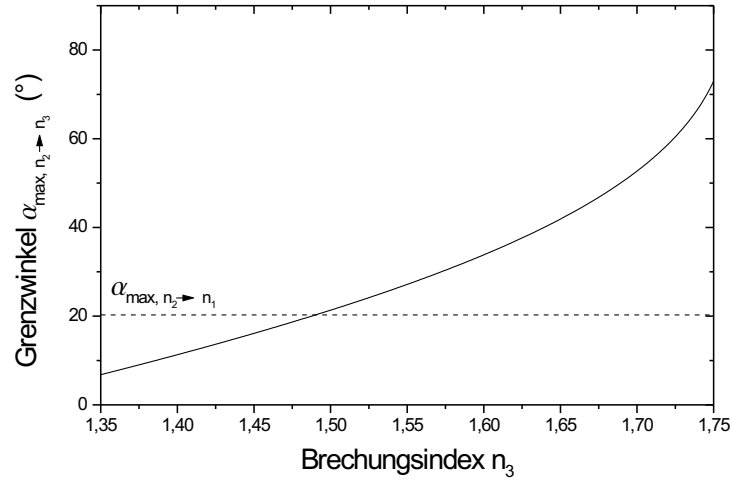


Abbildung 5.2: Abhängigkeit des Winkels $\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_3}$ vom Brechungsindex n_3 mit den Brechungsindices $n_1 = 1$ und $n_2 = 1,7946$. Damit an der Prismenrückseite eine Totalreflexion gewährleistet ist, ist der Einkoppelwinkel α nach Gleichung 5.4 kleiner als $\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1} = 20,28^\circ$, in der Abbildung gestrichelt dargestellt, zu wählen.

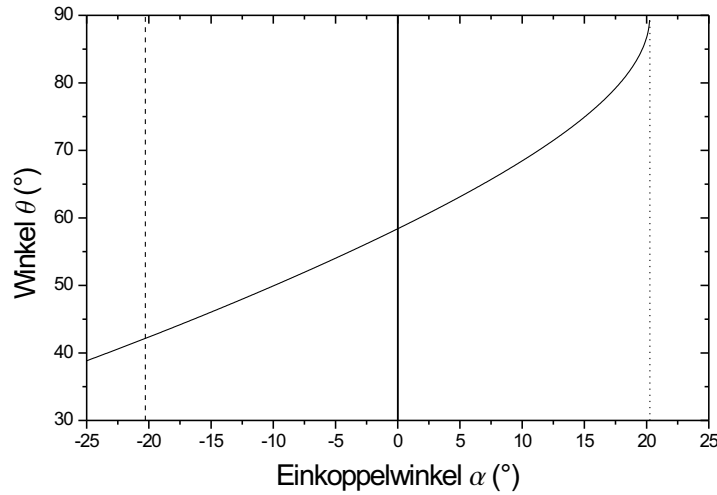


Abbildung 5.3: Abhängigkeit des Winkels θ vom Einkoppelwinkel α mit den Brechungsindices $n_1 = 1$, $n_2 = 1,7946$ und $n_3 = 1,49$. Die gestrichelte Linie stellt die zugehörige untere Grenze $\alpha_{\min, n_3 \rightarrow n_1}$, die gepunktete Linie die obere Grenze $\alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1}$ des Einkoppelwinkels α dar. Die Grenzen korrespondieren mit resultierenden DFB-Wellenlängen λ_{DFB} nach Gleichung 4.6.

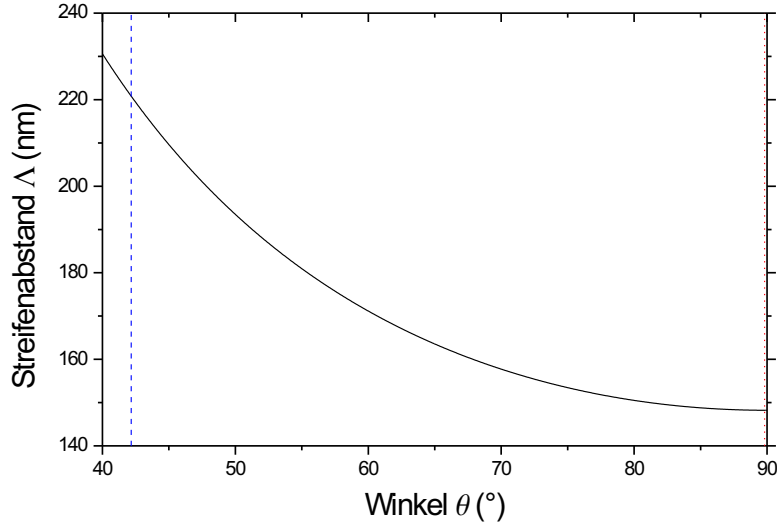


Abbildung 5.4: Abhängigkeit des Streifenabstands Δ vom Winkel θ mit den Brechungsindices $n_1 = 1$, $n_2 = 1,7946$ und $n_3 = 1,49$. Die gestrichelte Linie bei $\theta = 42,16^\circ$ bezeichnet den minimalen, die gepunktete Linie bei $\theta = 89,82^\circ$ den maximalen Winkel $\theta_{\min/\max}$.

Für den Laserbetrieb wird ein hoher Wirkungsgrad bzw. eine niedrige Pump-Photonendichte I_p und ein hohes Kontrastverhältnis V angestrebt (Gleichungen 4.7 bis 4.12). Das Kontrastverhältnis V ist nach Gleichung 3.10 von dem zeitlichen Verlauf der Intensitäten I_1 und I_2 der beiden interferierenden Strahlen abhängig. In dieser Konfiguration durchläuft der an der Rückseite des Prismas reflektierte Strahl 2 mit der Intensität I_2 eine längere Strecke als der direkt auf die Grenzschicht $n_2 \rightarrow n_3$ auftreffende Strahl 1 der Intensität I_1 . Aufgrund der Pulslänge τ_p des verwendeten Lasers ist eine zeitliche Überlappung gewährleistet (Abschnitte 3.1.1.2 und 5.3.1). Für eine Totalreflexion des Strahls 2 an der Grenzfläche $n_2 \rightarrow n_1$ ergibt sich nach den Fresnelgleichungen 3.38 und 3.39 für Einfallswinkel $\alpha < \alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1}$ ein Reflexionsvermögen von $R_{\parallel} = |r_{\parallel}^2|/|A_{\parallel}|^2 = 1$ und $R_{\perp} = |r_{\perp}|^2/|A_{\perp}|^2 = 1$. Wird vorausgesetzt, dass die beiden exemplarisch betrachteten Strahlen 1 und 2 die gleiche Intensität besitzen (Abschnitt 3.1.1.1) und die Absorption des Prismenmaterials vernachlässigt werden kann, so ergibt sich daraus ein ideales Kontrastverhältnis von $V = 1$ im Überlappungsbereich.

Für Einfallswinkel $\alpha > \alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1}$ ist das Reflexions- und Transmissionsvermögen für parallel und senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht in Abbildung 5.5 dargestellt. Die Ausbildung eines Gitters ist für $\alpha > \alpha_{\max, n_2 \rightarrow n_1}$ möglich, allerdings steigt mit wachsendem Winkel α das Transmissionsvermögen und der Kontrast V der Gitters verringert sich.

Auf die Grenzfläche $n_2 \rightarrow n_3$ treffen beide Strahlen unter gleichem Winkel γ (Abbildung

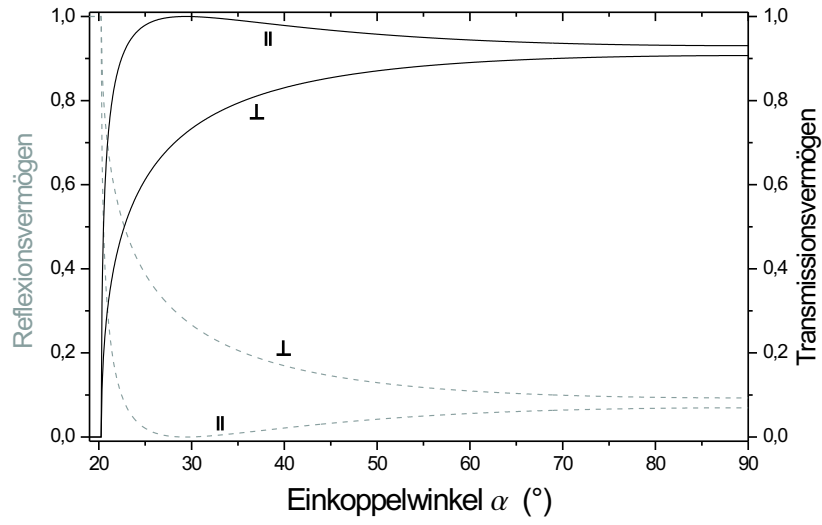


Abbildung 5.5: Reflexions- (grau, gestrichelt) und Transmissionsvermögen (schwarz) für unterschiedliche Polarisationszustände des eingestrahnten Lichts an der Grenzfläche $n_2 \rightarrow n_1$ mit den Brechungsindizes $n_1 = 1$ und $n_2 = 1,7946$.

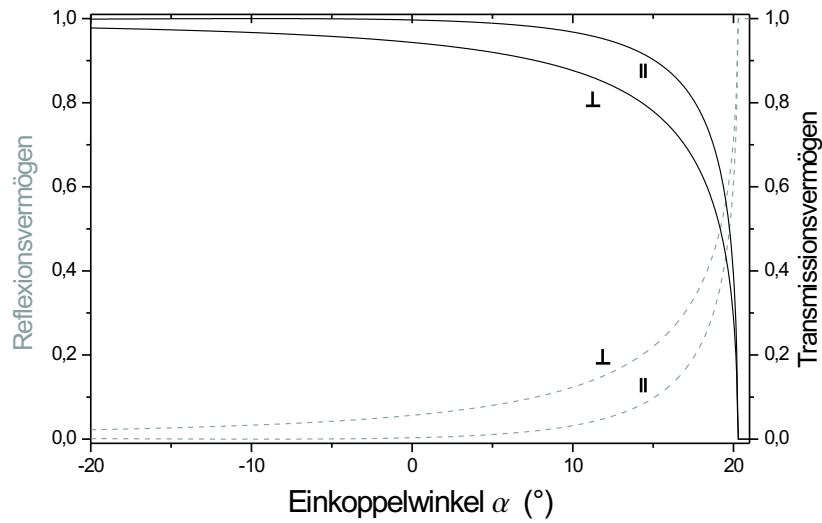


Abbildung 5.6: Reflexions- (grau, gestrichelt) und Transmissionsvermögen (schwarz) für unterschiedliche Polarisationszustände des eingestrahnten Lichts an der Grenzfläche $n_2 \rightarrow n_3$ mit den Brechungsindizes $n_1 = 1$, $n_2 = 1,7946$ und $n_3 = 1,49$.

5.1) und es kommt zu einer, für beide Strahlen gleich großen, Verkleinerung der einstrahlten Intensitäten in Abhängigkeit vom Einkoppelwinkel α (Abbildung 5.6). Dadurch ändert sich zwar das Kontrastverhältnis V nicht, jedoch die in die Schicht eingebrachte Energie, welche zur Erzeugung des Populationsdichtegitters und der Besetzungsinversion benötigt wird.

Ebenso treten in analoger Betrachtung der Brechung an der Grenzfläche $n_3 \rightarrow n_1$ für Winkel $\alpha > \alpha_{\min, n_3 \rightarrow n_1} = -20,2794^\circ$ Verluste aufgrund der zunehmenden Transmission aus der Schicht in das umgebende Medium Luft auf. Derartige Verluste können jedoch, z.B. durch das Aufbringen einer metallischen Beschichtung, vermieden werden.

5.2 Spektroskopische Diagnostik

5.2.1 Monochromatoren

Für die spektrale Auswertung des DFB-Ausgangssignals wurde ein 0,5 m-Gittermonochromator in der Czerny-Turner-Aufstellung der Firma Jarrell-Ash (Abbildung 5.7) mit wechselbaren Gittern und Eintrittsspalten eingesetzt [25, 188, 189].

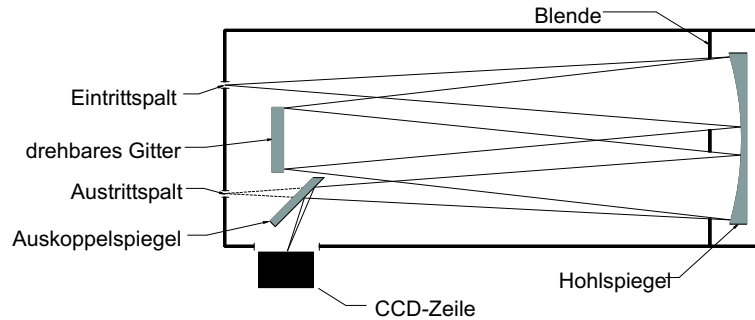


Abbildung 5.7: Schematischer Aufbau des verwendeten Gittermonochromators.

Das zu untersuchende Signal wird mit Hilfe eines Spiegels auf eine CCD-Zeile (2048 Pixel mit Pixelbreite von $p = 13 \mu\text{m}$) abgebildet, welche über eine AD-Wandler-Karte ausgelesen wird, so dass die Daten direkt am Rechner weiterverarbeitet werden können. Die Kalibrierung des Systems erfolgt mit den bekannten Emissionsspektren von Hohlkathodenentladungslampen (engl.: pen rays) [190]. Mit Hilfe einer Neon-Niederdruck-Hohlkathodenentladungslampe wurde das Auflösungsvermögen des Monochromators (Eintrittsspaltbreite $s=10 \mu\text{m}$, Gitterkonstante $g=1200$ Striche/mm) zu $\Delta\lambda = 0,02 \text{ nm}$ bestimmt (Abbildung 5.8). Dieser Wert wird von der natürlichen Linienbreite, sowie der Doppler- und Druckverbreiterung der Lampe um mehrere Größenordnungen unterschritten und spiegelt somit das intrinsische Apparateprofil des Monochromators wieder, welches jeder Messung überlagert ist.

Neben dem 0,5 m-Gittermonochromator stand für die spektrale Auswertung ein optisches Vielkanalanalysatorsystem (engl.: **O**ptical-**M**ultichannel-**A**nalyzer) der Firma EG&G Princeton Applied Research (Typ: OMA4, [191]) zur Verfügung. Das System besteht aus einem Spektrographen, einer Bildverstärkereinheit und einer Auswerteeinheit. Der Spektrograph besitzt eine Fokallänge von 0,275 m und ist mit drei Gittern der Gitterkonstanten $g_1 = 300$ Linien/mm, $g_2 = 600$ Linien/mm und $g_3 = 1200$ Linien/mm ausgestattet. Bei der Verwendung des Gitters 3 und einem Eintrittsspalt der Breite $s = 10 \mu\text{m}$ ergibt sich ein spektrales Auflösungsvermögen von $\Delta\lambda = 0,1 \text{ nm}$ bei der Aufnahme eines Wellenlängenbereiches der Breite $\lambda_{\text{range}} = 67 \text{ nm}$. Eine detaillierte Beschreibung des Gesamtsystems findet sich in der Dissertationsschrift von J. Bublitz, welcher dieses System für zeitaufgelöste laserinduzierte Fluoreszenzmessungen an mineralölbelasteten Wasserproben einsetzte [192].

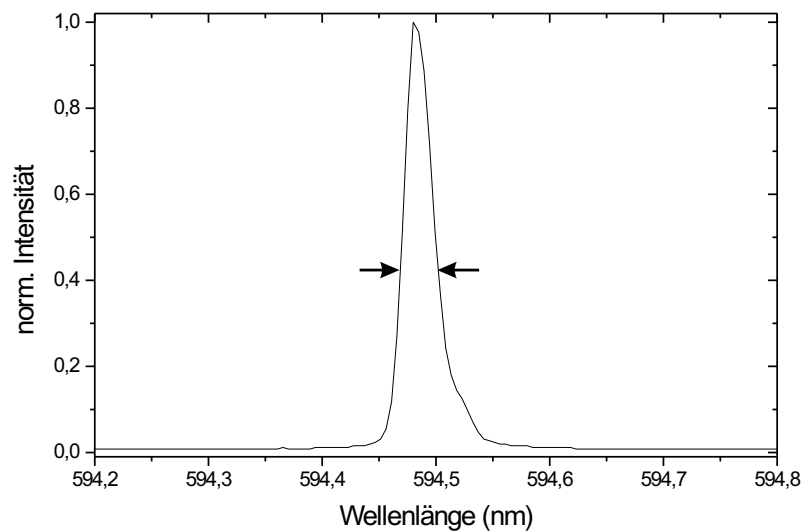


Abbildung 5.8: Bestimmung des Auflösungsvermögens des Monochromators mit Hilfe einer Neon-Spektrallinie ($\lambda = 594,48 \text{ nm}$) zu $\Delta\lambda = 0,02 \text{ nm}$.

Für die spektrale Auswertung des über die Faserspitze detektierten Signals wurde der bereits in Abschnitt 3.4 vorgestellte 0,2 m-Gittermonochromator der Firma Jobin Yvon mit wechselbaren Spalten und festem Gitter ($g=1200 \text{ Striche/mm}$) eingesetzt. Die Auflösung beträgt $\Delta\lambda = 0,5 \text{ nm}$ für $\lambda = 500 \text{ nm}$ [148]. In den in Abschnitt 3.4 beschriebenen Experimenten wurden cw-Lasersysteme verwendet. Die im Rahmen dieser Experimente eingesetzte Datenerfassung ist ebenfalls in Abschnitt 3.4 erläutert.

In den folgenden Experimenten wurden gepulste Lasersysteme mit niedriger Wiederholrate verwendet, so dass eine Modifikation der Datenerfassung nötig wurde: Liegt ein kontinuierliches optisches Signal vor, ist das maximale Zeitfenster, in welchem der Photonen-zähler einen Wert pro Zeiteinheit ermittelt, durch die Verweildauer der Sonde pro Messpunkt (Abschnitt 2.6.1) begrenzt. Wird dieses Zeitfenster zu groß gewählt, kommt es zu einem Verschmieren des resultierenden optischen Bildes.

Für ein mit niedriger Frequenz gepulstes optisches Signal ist derart zu verfahren, dass der Photonen-zähler über eine externe Diode getriggert wird und nur für die Dauer des Lichtpulses bzw. des Antwortsignals des Photomultipliers Photonen zählt. Dazu wurde eine Schaltung entworfen und aufgebaut, welche die variable Einstellung der Position und Länge eines derartigen Fensters (Gate) ermöglicht. Die vorliegenden Signale sind in Abbildung 5.9 dargestellt: Die Schaltung erhält über eine Diode einen Triggerpuls, welcher abhängig von der Einstellung der Schaltung das Zählfenster digital öffnet und schließt. Innerhalb des Fensters reagiert der Photonen-zähler auf das Photomultipliersignal. Zusätzlich kann über

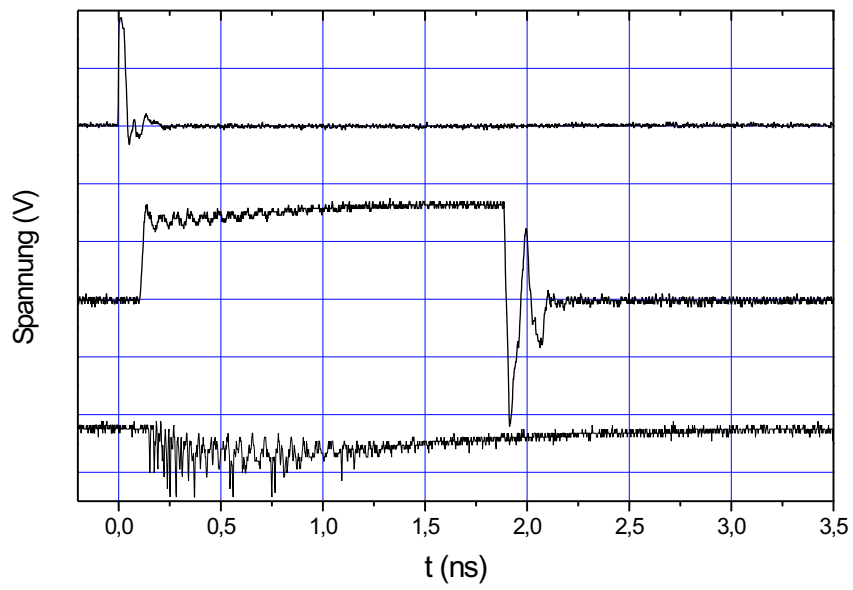


Abbildung 5.9: Darstellung des zeitlichen Verhaltens des Triggerpulses (oben, rot), einer möglichen Position des Zählfensters für den Photonenzähler (mitte, schwarz) und des Photomultipliersignals (unten, grün).

mehrere Pulse gemittelt werden. Die Mittelung, die Wiederholrate des optischen Signals und die Rasterfrequenz des Verschiebetisches (Abschnitt 2.6.1) sind geeignet aneinander anzupassen, um ein Verschmieren des resultierenden optischen Bildes zu vermeiden.

5.2.2 Streackkamera

Die im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten gepulsten Lasersysteme besitzen Pulsdauern im Bereich von einigen bis einigen hundert Pikosekunden im sichtbaren Spektralbereich. Die Pulsformen lassen sich in diesem Zeitbereich am geeignetsten mit einer Streackkamera vermessen. Eine derartige Kamera wurde im Rahmen dieser Arbeit zur Charakterisierung der kurzen Laserpulse der Pumpquelle und des DFB-Lasers angeschafft und eingesetzt.

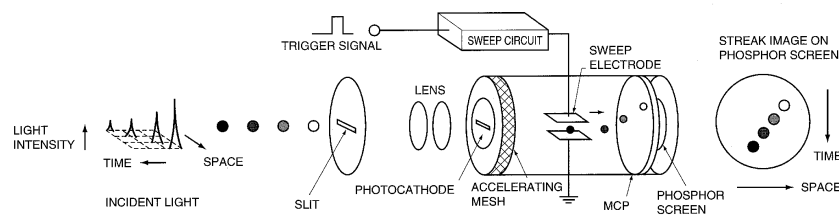


Fig. 1 Operating Principle of the Streak Tube

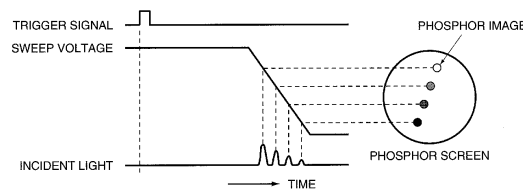


Fig. 2 Operation Timing (at time of sweep)

Abbildung 5.10: Die Abbildung zeigt schematisch die Funktionsweise einer Streackkamera: Die zeitliche Information, die Pulslänge, wird in eine räumliche Information, d.h. eine Ablenkung auf einem Phosphorschirm, umgewandelt. Diese räumliche Ablenkung wird detektiert und so auf die zeitliche Information zurückgeschlossen. Die Abbildung ist [193] entnommen.

Die Funktionsweise dieser Kamera der Firma Optronis¹ ist in Abbildung 5.10 dargestellt und wird im Folgenden kurz erläutert: Über eine schnelle Photodiode, welche als optische Triggereinheit in das Kamerasystem integriert ist, wird ein Teil des zu detektierenden Pulses als Trigger für die Kamera verwendet. Aufgrund der Ansprechzeit der Elektronik (SWEEP CIRCUIT) wird die an die Ablenkplatten (SWEEP ELECTRODE) angelegte Spannungsrampe erst nach der Zeit τ_{system} gestartet. Der zu detektierende Puls wird über die Schlitzblende (SLIT) und ein Linsensystem (LENS) auf eine Photokathode (PHOTOCATHODE) abgebildet. Die entstehenden Photoelektronen werden in Richtung der Vielkanalplatte (MCP: engl.: Multi-Channel-Plate) beschleunigt (ACCELERATING MESH)

¹Typ: Optoscope; Wellenlängenbereich: $\lambda_{\text{min}} = 350 \text{ nm}$ bis $\lambda_{\text{max}} = 850 \text{ nm}$, [194].

und bewegen sich durch die Ablenkplatten in Richtung der Vielkanalplatte. Innerhalb der Vielkanalplatte wird die Elektronendichte erhöht. Die resultierenden Elektronen treffen nach Verlassen der Viel-Kanal-Platte auf einen Phosphorschirm (PHOSPHOR SCREEN), wo sie mit einer CCD-Kamera² detektiert werden.

Aufgrund der Verzögerung τ_{system} muss der zu detektierende Lichtpuls gegenüber dem als Trigger verwendeten Teil zeitlich verzögert werden. Dabei ist die Verzögerung τ_{system} von der gewählten Spannungsrampe bestimmt. Die möglichen Spannungsrampen $U(t)$ korrespondieren mit Ablenkgeschwindigkeiten $v(t)$ und geben so die Auflösung der Zeitachse (TIME in Abbildung 5.10) auf der Oberfläche des Phosphorschirms bzw. auf der CCD-Kamera vor. Daraus resultieren für das verwendete System Zeitachsen zwischen $t(x)_{\text{min}} = 180 \text{ ps}$ bis $t(x)_{\text{max}} = 18 \text{ ns}$. Die Zeitauflösung wird durch die Pixelgröße der verwendeten CCD-Kamera vorgegeben und beträgt $\Delta t \leq 2 \text{ ps}$. Die möglichen Ablenkgeschwindigkeiten $v(t)$ und die Verzögerung τ_{system} sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst.

$v(t)$ (ps/mm)	10	25	50	100	250	500	1000
τ_{system} (ns)	16	15	24	35	45	70	110

Tabelle 5.1: Übersicht der möglichen Ablenkgeschwindigkeiten $v(t)$ und der resultierenden Verzögerung τ_{system} der verwendeten Streackkamera [194]. Die Ansprechzeiten τ_{system} des Systems korrespondieren mit notwendigen Verzögerungstrecken $x(\tau_{\text{system}})$ für den zu detektierenden Laserpuls: z.B.: $\tau_{\text{system}} = 15 \text{ ns} \rightarrow x = 4,5 \text{ m}$; $\tau_{\text{system}} = 110 \text{ ns} \rightarrow x = 33 \text{ m}$.

Wurden Messungen bei verschiedenen Auflösungen durchgeführt, wurde, aufgrund der Unterschiede in der Verzögerung τ_{system} , die zeitliche Verzögerung des Lichtpulses $\tau_{\text{puls}}(x)$ größer als die maximal auftretende Verzögerung τ_{system} gewählt, d.h. es wurde einmalig eine feste Verzögerungstrecke $x(\tau_{\text{puls}})$ für den zu detektierenden Lichtpuls realisiert, und das Signal der optischen Triggereinheit mit einer elektronischen Verzögerungseinheit angepasst.

Das verwendete Kamerasystem erlaubt die Aufnahme von Pulsen mit einer Wiederholrate $f_{\text{max, Mittelung}} \leq 2,5 \text{ kHz}$, wobei die Auswerteeinheit eine Mittelung über mehrere Pulse durchführt und dem Anwender zur weiteren Auswertung zur Verfügung stellt. Die Messung von Einzelpulsen ist für Wiederholraten $f_{\text{max, Einzel}} \leq 50 \text{ Hz}$ möglich. Um die Wiederholrate des verwendeten Microchiplasers für Einzelpulsmessungen anzupassen, wurde ein akusto-optischer Modulator verwendet (Abschnitt 5.3.1).

5.3 Experimenteller Aufbau

Das festkörperbasierte DFB-Farbstofflasersystem wird über einen in der Arbeitsgruppe entworfenen Microchiplaser (Abschnitt 5.3.1) optisch gepumpt. Durch einen Filter

²engl.: charge coupled device. Größe der aktiven Fläche: $741 \times 574 \text{ Pixel}$; Pixelgröße: $11,6 \times 11,2 \mu\text{m}^2$.

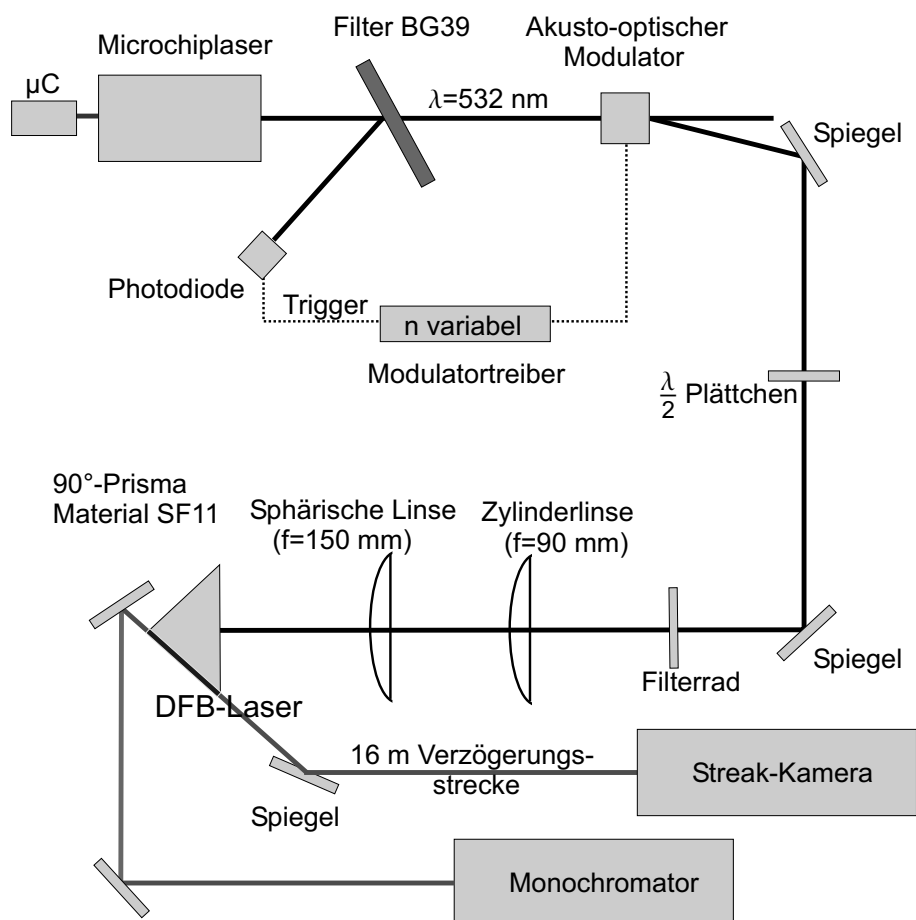


Abbildung 5.11: Experimenteller Aufbau des festkörperbasierten DFB-Farbstofflasers.

(BG39, [147]) wird die gewünschte Pumpstrahlung der Wellenlänge $\lambda = 532$ nm separiert. An der dem Laser zugewandten Filterseite entsteht ein Reflexionsanteil, welcher als Triggersignal für den nachgeschalteten akusto-optischen Modulator dient (Abschnitt 5.3.1). Der Modulator ermöglicht eine Anpassung der Wiederholrate $\nu_{\min} = 10$ Hz bis $\nu_{\max} = 1000$ Hz für Messungen des Pump- und DFB-Lichtes mit der Streackamera (Abschnitt 5.2.2) und dem optischen Nahfeldmikroskop (Abschnitt 2.5). Für ein optisches Gitter mit hohem Kontrastverhältnis nach Gleichung 3.10 wird über ein $\lambda/2$ -Plättchen die Polarisationsrichtung des Pumplichtes an die Prismenkonfiguration angepasst (Gleichung 3.8). Über ein Linsensystem wird das Pumplicht derart in der aktiven Schicht abgebildet, dass sich eine DFB-Struktur ausbildet. Das DFB-Signal wird bei Überschreiten der Pumpschwelle über die beiden Endflächen der Schicht emittiert und kann mit der Streackamera (Abschnitt 5.2.2) und dem Monochromator bzw. dem OMA-System (Abschnitt 5.2.1) zeitlich und spektral charakterisiert werden.

Das induzierte, transiente Gitter wird über das optische Nahfeldmikroskop detektiert (Abschnitt 2.5). Der Aufbau ist in Abbildung 5.12 dargestellt. Aufgrund des durch die farbstoffdotierte Schicht hervorgerufenen Fluoreszenzlichtes und der reduzierten Wiederholrate erfolgt eine Detektion des Pumplichtes über das in Abschnitt 5.2.1 aufgezeigte Monochromator- und Auswertesystem. Während bei der Justage des festkörperbasierten DFB-Farbstofflasers das Prisma geeignet im Strahlengang platziert werden kann, besteht diese Möglichkeit bei der Detektion mit dem optischen Nahfeldmikroskop nicht mehr: das Prisma sollte möglichst parallel zur Rasterebene fixiert werden. Der Pumpstrahl ist daher derart in die Prismenkonfiguration einzukoppeln, dass a) DFB-Laseraktivität auftritt und b) sich das gepumpte Volumen im Bereich der NSOM-Faserspitze befindet. Dabei ist zu beachten, dass der Verschiebetisch „lediglich“ einen Rasterbereich von $100 \times 100 \mu\text{m}$ ermöglicht (Abschnitt 2.5). Eine zusätzliche, grobere xy-Positioniermöglichkeit der Spitze wurde getestet, aber aufgrund des Auftretens von thermischen Driften verworfen.

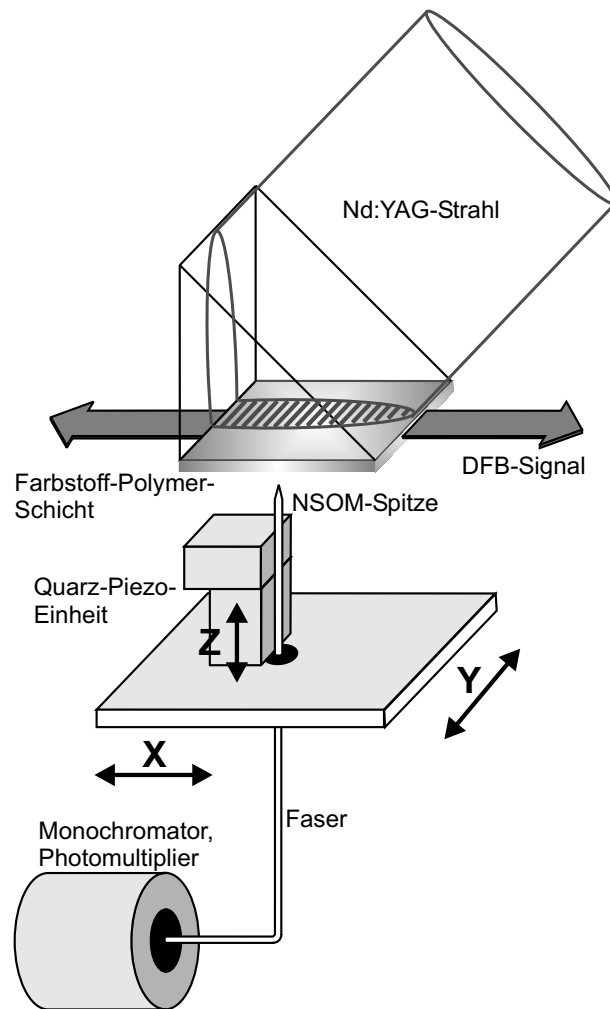


Abbildung 5.12: Aufbau für nahfeldmikroskopische Untersuchungen des festkörperbasierten DFB-Farbstofflasers nach Abbildung 5.11. Zur Verdeutlichung der Entstehung des optischen Gitters sind einige Strahlen aus dem gaußförmigen Strahlprofil dargestellt.

5.3.1 Microchiplaser und akusto-optischer Modulator

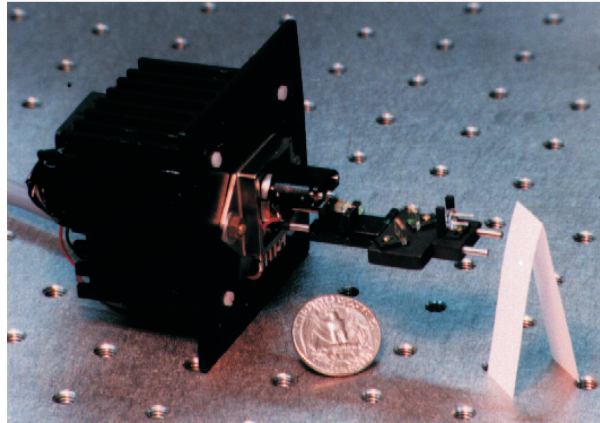


Abbildung 5.13: Photographie des in der Arbeitsgruppe realisierten Microchiplasers. Es ist die miniaturisierte optische Bank zu erkennen, welche vor der Pumpdiode platziert ist und die Justage der Einkoppeloptik und der Kristalle, welche in einzelnen Halterungen fixiert sind, ermöglicht.

Bei dem in der Arbeitsgruppe realisierten Microchiplaser (Abbildung 5.13) handelt es sich um einen passiv gütegeschalteten Nd:YAG-Laser mit einer Wiederholrate von $\nu = 2,5$ kHz und einer Emissionswellenlänge $\lambda = 1064$ nm, welche über einen KTP-Kristall auf $\lambda = 532$ nm frequenzverdoppelt wird.

Der Cr^{4+} -dotierte Nd:YAG-Kristall (Neodym-Yttrium-Aluminium-Granat, $1 \times 1 \times 1$ mm³) wird über eine Broad-Area Laserdiode ($\lambda(20^\circ \text{C}) = 808$ nm, $I = 2$ W, cw), welche über eine microcontrollerbasierte Strom- und Temperatursteuerung auf das Absorptionsmaximum von Nd:YAG bei $\lambda = 808,3$ nm [195] stabilisiert ist, über geeignete Kollimationsoptiken (z.Zt. eine Gradientenindexlinse) optisch gepumpt. Die Funktionsweise der Pumpdiode ist an anderer Stelle ausreichend diskutiert [169, 196, 197]. Die antireflexbeschichteten Stirnflächen des Kristalls bilden den Resonator. Die Cr^{4+} -Dotierung wirkt als passiver Güteschalter und bestimmt die Wiederholrate des Systems. Die Ausgangswellenlänge des Microchiplasersystems beträgt $\lambda = 1064$ nm und wird über einen KTP-Kristall frequenzverdoppelt [139, 169, 197, 198].

Die Energie pro Puls beträgt $E_p(\lambda = 532 \text{ nm}) = 0,8 \mu\text{J}$, die spektrale Breite wurde zu $\Delta\lambda < 0,02$ nm bestimmt, die Pulsdauer beträgt $\tau = 542$ ps (Abbildung 5.14) und das Strahlprofil ist gaußförmig (Abbildung 5.15).

Eine detaillierte Beschreibung zum Aufbau des Gesamtsystems ist in [199] zu finden.

Zur Anpassung der Wiederholrate wird dem frequenzverdoppelten Microchiplaser ein akusto-optischer Modulator nachgeschaltet. Die Funktionsweise des eingesetzten akusto-optischen Modulators [200] basiert auf dem akustooptischen Effekt: durch eine akustische Welle wird das Material deformiert. Diese Deformation führt zu einer Modulation des Brechungsindex. Je nach Anregungswellenlänge kann die Modulation des Brechungs-

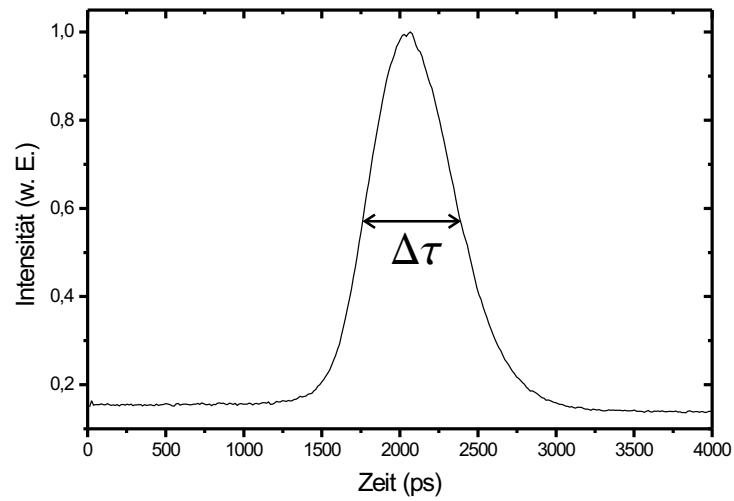


Abbildung 5.14: Zeitverhalten des Ausgangssignals des frequenzverdoppelten Microchiplasers bei der Emissionswellenlänge $\lambda = 532$ nm gemessen mit der Streikkamera (Abschnitt 5.2.2). Es ergibt sich Pulslänge von $\Delta\tau = 543$ ps.

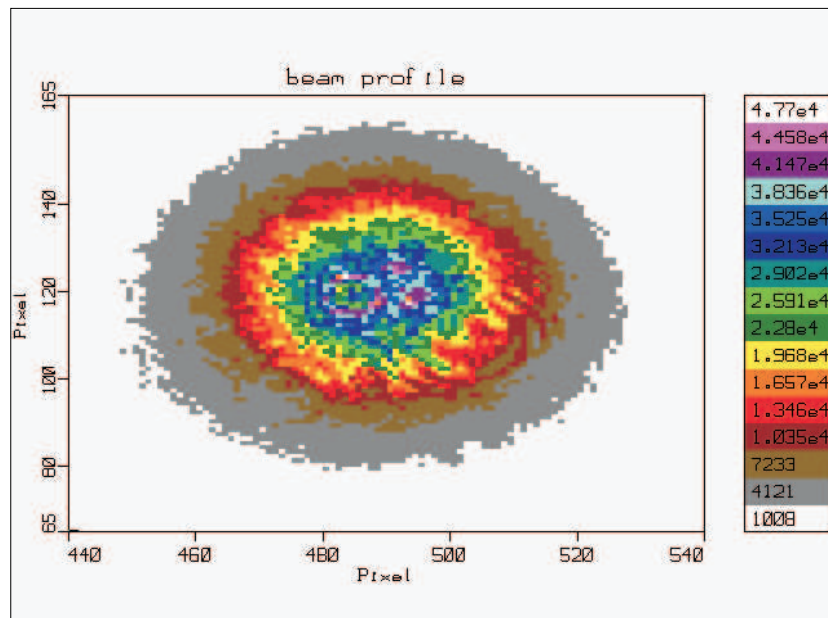


Abbildung 5.15: Strahlprofil des frequenzverdoppelten Microchiplasers bei der Emissionswellenlänge $\lambda = 532$ nm gemessen mit dem optischen Vielkanalanalysator (Abschnitt 5.2.1).

indexes variiert werden. Der akusto-optische Modulator wurde in diesem Aufbau derart beschaltet, dass nur innerhalb eines einstellbaren Zeitfensters, dessen Wiederholrate ebenfalls einstellbar ist, Lichtpulse transmittieren, d.h. der akusto-optische Modulator wird als Puls-Picker verwendet. Eine detaillierte Beschreibung des Schaltplanes ist im Anhang der Diplomarbeit von T. Voß zu finden [169].

5.3.2 Präparation der DFB-Prismen

Die in Abschnitt 4.1.1 vorgestellten Lösungen von Farbstoffen und Sol-Gel bzw. PMMA wurden mit einem im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten Spin-Coater auf die Glasplättchen bzw. Prismen aufgeschleudert. Dazu wird die Beschichtungsflüssigkeit auf das Substrat aufgebracht, wobei zu beachten ist, dass die Lösung das Substrat vollständig benetzt. Das Substrat wird dann auf Endgeschwindigkeit beschleunigt. Dabei bilden sich auf der Oberfläche anfänglich aufgrund der Massenträgheit Spiralen aus. Wenn das Substrat mit konstanter Winkelgeschwindigkeit rotiert und die Viskosität dominiert, wird die Schicht kontinuierlich dünner. Am Rand können sich Inhomogenitäten bilden, da die Flüssigkeit Tropfen bildet und das Substrat verlässt. Im weiteren Verlauf dominiert die Verdunstung des Lösungsmittels, was eine Erhöhung der Viskosität und letztendlich ein Erstarren der Beschichtung bewirkt. Der hier dargestellte Prozessablauf ist deutlich vereinfacht dargestellt. Der tatsächliche Ablauf ist noch nicht vollkommen geklärt: Es sind lediglich direkte Prozessabhängigkeiten bekannt, die empirisch Konzentration der Lösung, Beschleunigung, Winkelgeschwindigkeit und Rotationsdauer mit Schichtdicke, Homogenität und Rauigkeit des Films verknüpfen: J. H. Lai zeigte beispielsweise eine direkte Abhängigkeit der Filmdicke von der Konzentration C der Lösung und des Molekulargewichts M_w [201] und C. W. Extrand eine inverse Abhängigkeit der Filmdicke von der Wurzel der Winkelgeschwindigkeit ω [202].

Bei der Präparation des Substrats ist auf ausreichende Sauberkeit zu achten, um sogenannte comets³ durch Staubpartikel zu vermeiden. Die Lösung sollte aus dem gleichen Grund keine Partikel enthalten. Zusätzlich ist ein geeignetes Lösungsmittel und eine geeignete Konzentration zu wählen, um eine radiale Streifenbildung zu vermeiden. Diese tritt auf, wenn das Lösungsmittel zu schnell verdunstet. Dabei kommt es zu einer Anreicherung von schwer flüchtigen Bestandteilen in der Oberfläche. Wenn die Oberflächenspannung in diesem Bereich größer ist als die der „Startlösung“, welche sich immer noch unter der Oberfläche befindet, tritt eine Instabilität im Bereich auf, wo die höhere Oberflächenspannung Material auf das Substrat, z.B. den Wafer, aufträgt. Zusätzlich ist auf eine plane Auflagefläche und ein temperaturstabilisiertes Substrat-Substrathalter-System zu achten, um sogenannte chuck marks⁴ zu vermeiden [203, 204].

³Die Namensgebung entstand aus dem ähnlichen Erscheinungsbild, welches Kometen beim Eintauchen in die Erdatmosphäre erzeugen.

⁴Dabei handelt es sich um Inhomogenitäten, welche durch den Halter hervorgerufen werden.

Aufgrund der Tropfenbildung während des Aufschleuderprozesses am Rand des Substrats können hier Inhomogenitäten in der Schichtdicke und Oberflächenrauigkeit auftreten. Diese Inhomogenitäten wurden durch eine geeignete Lösungsmittelkonzentration minimiert, da gerade in diesen Randbereichen die Auskopplung der DFB-Laserstrahlung erfolgt. Zusätzlich wurde mit geeigneten, teils selbstentworfenen Werkzeugen der Randbereich definiert nachbearbeitet [169].

Zur Kalibrierung des Spin-Coaters wurden Schichten mit unterschiedlichen Aufschleudergeschwindigkeiten hergestellt und mit einem Profilometer [205] vermessen. Die Substrate wurden dazu an ihrem Rand mit einem Klebestreifen (Tesa[©]) versehen, welcher nach dem Aufschleudern der Lösung vorsichtig entfernt wurde.

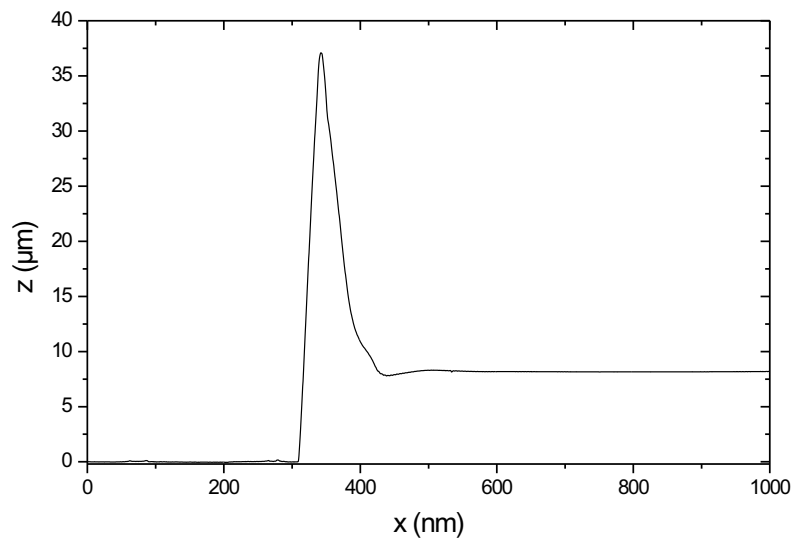


Abbildung 5.16: Schichtdickenprofil einer farbstoffdotierten Polymethylmetacrylat-Schicht. Im Bereich $x = 0$ bis 300 nm befand sich zuvor der Klebestreifen. Die Schicht hat eine Höhe $z = 8,17$ µm.

Abbildung 5.16 zeigt einen typischen Profilometerdatensatz: Durch den Klebestreifen kommt es zu einer lokalen Erhöhung der aufgeschleuderten Substanz.

6 Messungen an Rhodamin 6G-dotierten Sol-Gel-Schichten

D. Jo et al. beobachtete 1993 die Lasertätigkeit von farbstoffdotierten Sol-Gel-Schichten [7]. Im Jahre 2000 wurde erstmals die Laseraktivität von Rhodamin 6G-dotierten Sol-Gel-Schichten in einem Laseraufbau mit verteilter Rückkopplung von X.-l. Zhu et al. [206] für $4,5 \times 2 \times 10 \text{ mm}^3$ große Siliziumwürfel gezeigt. Zwei Jahre später zeigten X.-l. Zhu und D. Lo die Laseraktivität eines Rhodamin 6G-dotierten Sol-Gel-Glaswellenleiters [180] mit dem gleichen optischen Aufbau [206]. Sie realisierten eine Oberflächenrauigkeit von $\Delta z < 17 \text{ nm}$. Der Brechungsindex der Schicht lag zwischen $n = 1,54$ und $n = 1,61$. Eine Angabe zur Lebensdauer der hergestellten Schichten erfolgte nicht.

Aufgrund der zuvor genannten niedrigen Oberflächenrauigkeiten und der einfachen Präparation (Abschnitt 4.1.1.1 und [180]) wurde das Sol-Gel-Verfahren zur Herstellung Rhodamin 6G-dotierter Schichten herangezogen. Dazu wurde zunächst die von X.-l. Zhu and D. Lo [180] beschriebene Lösung und später eine aus folgenden Komponenten bestehende Lösung eingesetzt:

Isopropanol	2,36 g,
Tetraethoxysilan (TEOS)	4,17 g,
Titanbutoxid	2,93 g und
Acetylaceton	1,70 g.

Dieser Lösung wurden nach dem Zusammenfügen 0,72 g einmolare Salzsäure beigegeben. Abschließend wurde sie mit dem Laserfarbstoff Rhodamin 6G dotiert. Jeweils einige Tropfen dieser Lösung wurden zur weiteren Untersuchung mit einem Spin-Coater auf Glaträger oder auf BK7-Glasprismen aufgeschleudert (Abschnitt 5.3.2) und die erzeugten Schichten bis zu mehreren Tagen getrocknet.

Bei der Präparation wurde eine Schichtdicke d von einigen Mikrometern angestrebt, um einen Vergleich mit den bereits mit PMMA-Schichten erzielten Messergebnissen [169, 185] zu ermöglichen (Abschnitt 7). In Abschnitt 6.1 werden die optische und mechanische Stabilität und in Abschnitt 6.2 die nahfeldmikroskopischen Untersuchungen der Schichten dargestellt.

6.1 Stabilität

Zur Überprüfung der Laseraktivität der hergestellten Schichten wurden BK7-Glasprismen mit den beschriebenen Lösungen beschichtet und in dem in Abbildung 5.11 skizzierten Aufbau mit dem Microchiplasersystem bei einer Wiederholrate von $\nu = 50 \text{ Hz}$ und einer variablen Pumpimpulsenergie von E_p optisch gepumpt. Für Pumpimpulsenergien $E_p < 0,3 \mu\text{J}$

konnte keine Laseraktivität detektiert werden. Für Energien $0,3 \mu\text{J} < E_p < 0,8 \mu\text{J}$ konnte Laseraktivität für einen Zeitraum $\Delta t < 20 \text{ s}$ detektiert werden. Für Pumpulsenergien $0,8 \mu\text{J} < E_p < 45 \mu\text{J}$ wurde das Microchiplasersystem durch einen frequenzverdoppelten Nd:YLF-Lasersystem ersetzt (siehe Tabelle 7.1 in Abschnitt 7.2). Auch hier wurde eine Laseraktivität für einen Zeitraum $\Delta t < 20 \text{ s}$ detektiert. Dieses zeitliche Verhalten wurde ebenfalls für unterschiedliche Schichtdicken von $d = 100 \text{ nm}$ bis $d = 3 \mu\text{m}$ und verschiedene Farbstoffkonzentrationen beobachtet.

Die Beständigkeit gegen äußere mechanische Einflüsse wurde mit einem optischen Tuch, einer Kunststoffpinzette und der Spitze eines Metallmessers geprüft. Dabei zeigten sich für die untersuchten Schichtdicken von einigen Mikrometern bereits beim Kontakt mit dem optischen Tuch schwere Schäden in der Oberfläche. Bei Kontakt mit der Kunststoffpinzette wurde ein Abplatzen der Schicht im Berührungsbereich beobachtet. Mit dem Messer konnte die Schicht mit wenigen Berührungen vom verwendeten BK7-Glasprisma entfernt werden, wobei das Material spröde abplatzte. Eine Lösung der Sol-Gel-Schicht konnte in wenigen Minuten im Ultraschallbad erreicht werden.

6.2 Nahfeldmikroskopische Untersuchungen

6.2.1 Absorptionsverhalten

Zur Bestimmung des Absorptionsverhaltens der farbstoffdotierten Sol-Gel-Schicht bei der Pumpwellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ wurde das optische Nahfeldmikroskop im Durchlichtmodus betrieben (Abschnitt 2.5): Dazu wurde die Probe gerastert und über die ortsfeste Faserspitze beleuchtet. Das über eine Mikroskopoptik (Vergrößerung $A = 20$, numerische Apertur $NA = 0,35$) kollimierte Licht wurde mit Hilfe eines Interferenzfilters ($\lambda = 532 \text{ nm}$) vom Fluoreszenzlicht der Schicht separiert und mit dem Photomultipliersystem (Abschnitt 5.2.1) ausgewertet.

Abbildung 6.1 zeigt die Absorptionsmessung der Rhodamin 6G-dotierten Sol-Gel-Schicht mit einer Schichtdicke $d \approx 1,2 \mu\text{m}$. Die Schicht besitzt eine starke Stufenkante (linkes Bild), welche auch im Absorptionssignal (rechtes Bild) detektiert wird.

6.2.2 Fluoreszenzverhalten

Zur Bestimmung des Fluoreszenzverhaltens der farbstoffdotierten Sol-Gel-Schicht bei der Pumpwellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ wurde das optische Nahfeldmikroskop im Durchlichtmodus, wie bereits in Abschnitt 6.2.1 erläutert, betrieben. Das über eine Kollimatoroptik detektierte Licht wurde mit Hilfe des Kantenfilters RG570 [147] vom Pumplicht separiert und mit dem Photomultipliersystem ausgewertet.

Abbildung 6.2 zeigt die Fluoreszenzmessung der Rhodamin 6G-dotierten Sol-Gel-Schicht mit einer Schichtdicke $d \approx 1,2 \mu\text{m}$. Die Schicht weist starke topographische Störungen und Risse (linkes Bild) auf, welche auch im Absorptionssignal (rechtes Bild) detektiert werden.

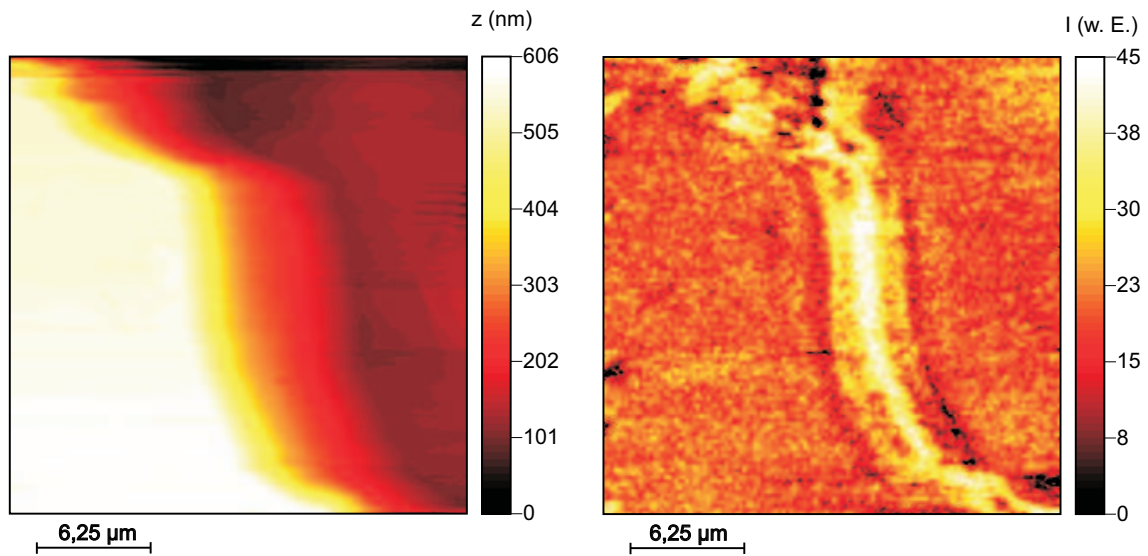


Abbildung 6.1: Nahfeldmikroskopische Absorptionsmessung der Sol-Gel-Schicht unter Verwendung eines (532 nm)-Interferenz-Filters: Die linke Abbildung zeigt das Amplitudensignal der Topographie. Die rechte Abbildung zeigt das über einen Photomultiplier detektierte optische Signal.

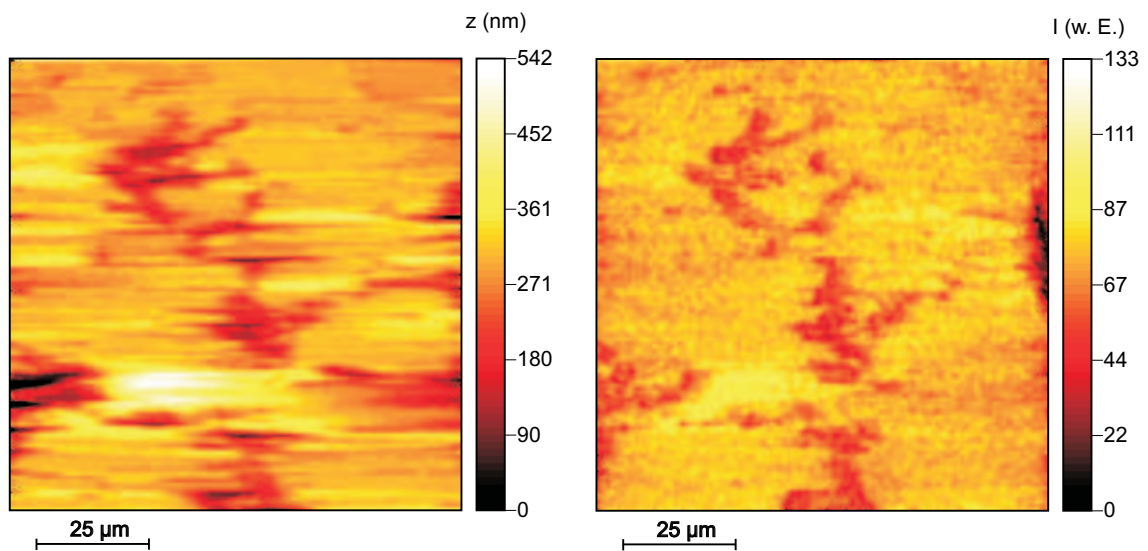


Abbildung 6.2: Nahfeldmikroskopische Fluoreszenzmessung der Sol-Gel-Schicht unter Verwendung eines RG570-Filters: Die linke Abbildung zeigt das Amplitudensignal der Topographie. Die rechte Abbildung zeigt das über einen Photomultiplier detektierte optische Signal.

6.3 Diskussion

Die in der Literatur beschriebene niedrige Oberflächenrauigkeit [180] konnte trotz gleicher und leicht modifizierter Sol-Gel-Lösungen nicht reproduziert werden. Derzeit werden weitere Lösungen sowie die Präparation der Schichten und ihre mechanische Stabilität für Schichtdicken von einigen Mikrometern geprüft [181].

Die in Abschnitt 6.1 dargestellte niedrige optische Stabilität lässt auf ein schnelles Ausbleichen des Farbstoffes in der Sol-Gel-Schicht schließen. Dieses Verhalten wird in Abschnitt 7.4 in Zusammenhang mit Messergebnissen zu Rhodamin 6G-dotierten PMMA-Schichten diskutiert.

Die niedrige optische Stabilität der Schichten und die starken topographischen Störungen der Oberfläche ergeben, dass derzeit kein Potenzial für den Einsatz von Sol-Gel-Schichten bei der orts- und zeitaufgelösten Detektion der DFB-Struktur vorhanden ist.

7 Messungen an Rhodamin 6G-dotierten PMMA-Schichten

Die Realisierung von miniaturisierten DFB-Chiplasern basierend auf laserfarbstoffdotiertem PMMA (Polymethylmethacrylat) ist Bestandteil der aktuellen Forschung [9, 207, 208]. Die DFB-Laseraktivität von farbstoffdotierten PMMA-Schichten mit einer Schichtdicke $d \approx 5 \mu\text{m}$ konnte von T. Voss [169] und C. Romano [185] gezeigt werden. Die von ihnen gewonnenen Daten werden durch weitere makroskopische Untersuchungen des Absorptionsverhaltens (Abschnitt 7.1), sowie des spektralen (Abschnitt 7.2) und zeitlichen Verhaltens (Abschnitt 7.3) ergänzt und die Stabilität der Rhodamin 6G-dotierten Schichten wird untersucht (Abschnitt 7.4). Ziel dieser Voruntersuchungen ist die Bestimmung relevanter Parameter für die numerische Simulation des Ratengleichungsmodells (Abschnitt 4.2). Zudem werden wichtige Ergebnisse zur geeigneten Präparation der Schichten für die nahfeldmikroskopischen Untersuchungen gewonnen: Um topographische Einflüsse (Abschnitt 2.7) auszuschließen, müssen die Schichten eine geringe Oberflächenrauigkeit und eine homogene Farbstoffverteilung aufweisen. Die Untersuchung des mikroskopischen Absorptions- und Fluoreszenzverhaltens der dotierten Schichten ist Bestandteil des Abschnitts 7.5. Die folgenden nahfeldmikroskopischen Untersuchungen geeigneter Rhodamin 6G-dotierter Schichten im Laserbetrieb und parallele Messungen des zeitlichen Verhaltens der emittierten DFB-Pulse liefern erstmals synchrone Datensätze des Kontrastverhältnisses V und des zeitlichen und spektralen Verhaltens der DFB-Pulse (Abschnitt 7.6.1). Die orts aufgelöste Messung der Eindringtiefe des evaneszenten Feldes des Pumplichtes (Abschnitt 7.6.2) im DFB-Laserbetrieb ermöglicht, Rückschlüsse auf die transiente induzierte Modulation des Brechungsindex der laseraktiven Schicht zu ziehen. Die Messergebnisse werden in Abschnitt 7.7 diskutiert und mit Modellen verglichen.

7.1 Absorptionsverhalten

Im Datenblatt zu Rhodamin 6G [165] wurde bereits eine Verschiebung des Absorptionsprofils in Abhängigkeit von dem verwendeten Lösungsmittel aufgezeigt. Zur Charakterisierung der farbstoffdotierten Schichten wurde daher das Absorptionsverhalten mit Hilfe eines Absorptionsspektrometers (Uvicon 820 Spectrometer [209]) und das Emissionsverhalten bei einer Pumpwellenlänge von $\lambda = 532 \text{ nm}$ mit Hilfe des optischen Vielkanalanalysators (Abschnitt 5.2.1) bestimmt und mit dem spektralen Verhalten einer Farbstofflösung verglichen (Abbildung 7.1). Als Farbstofflösung wurde eine Rhodamin 6G-Ethanol-Lösung mit einer Konzentration von $c = 0,03 \text{ g/l}$ in einer Küvette eingesetzt. Die Zusammensetzung der Lösung zur Herstellung der farbstoffdotierten Schichten betrug: 12 mg Rhodamin 6G (Molekulargewicht $MW_{6G}=479 \text{ g/mol}$), 2 g PMMA mit dem

Molekulargewicht $MW=100000$ g/mol und 7,5 ml Chloroform (CHCl_3). Bei einer experimentell bestimmten Dichte des PMMA von $\rho_{\text{PMMA}} = 1,176 \cdot 10^3$ kg/m³ ergibt sich daraus eine Teilchendichte von $N_0 = 8,87 \cdot 10^{24}$ m⁻³. Dabei wird vorausgesetzt, dass nach dem Aufschleuderprozess und der anschließenden Lagerung (1 Tag im Trockenschrank bei 30° – 40°) die Schicht vollständig frei von Lösungsmittel ist.

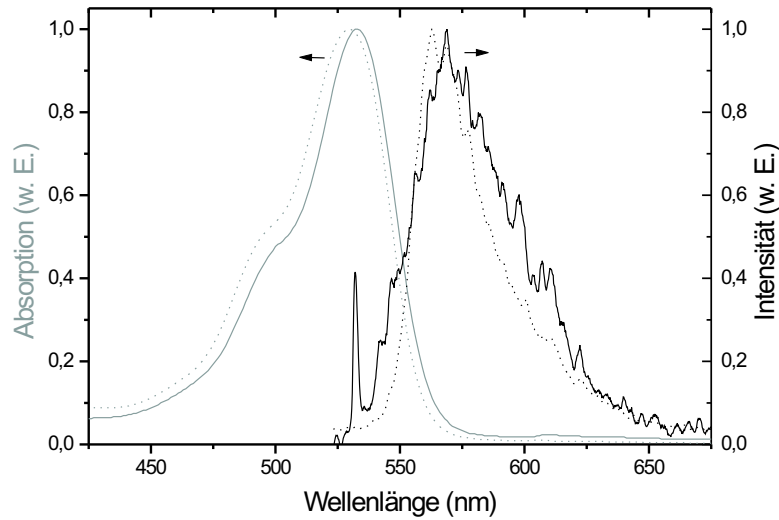


Abbildung 7.1: Absorptions- und Emissionsspektren von Rhodamin 6G in Ethanol (gestrichelte Linien) und in Polymethylmethacrylat ($MW=100000$ g/mol) (durchgezogene Linien). Der scharfe Peak im Emissionsspektrum bei $\lambda = 532$ nm ist auf Reflexe des Pumplichtes an der farbstoffdotierten Schicht zurückzuführen, welche über den optischen Vielkanalanalysator detektiert werden.

Abbildung 7.1 zeigt eine Verschiebung des Absorptionsmaximums für Rhodamin 6G in PMMA gegenüber Rhodamin 6G in Ethanol zu größeren Wellenlängen (Rotverschiebung) von $\Delta\lambda \approx 3$ nm und eine Rotverschiebung des Emissionsspektrums von $\Delta\lambda \approx 6$ nm. Das Absorptionsmaximum für Rhodamin 6G in PMMA beträgt $\lambda_{\text{abs,max}} = 532$ nm. Das Emissionssmaximum für Rhodamin 6G in PMMA beträgt $\lambda_{\text{ems,max}} = 569$ nm. Das Absorptionsverhalten wurde für verschiedene Polymerelementargewichte bzw. Polymerkettenlängen geprüft.

Abbildung 7.2 zeigt die normierten Absorptionsspektren für verschiedene Polymerkettenlängen: Das Absorptionsmaximum, $\lambda_{\text{abs,max}} = 532$ nm, ist unabhängig von der verwendeten Polymerkettenlänge.

Das Absorptionsverhalten für verschiedene Schichtdicken wurde für die Pumpwellenlänge $\lambda = 532$ nm bestimmt (Abbildung 7.3).

Die in Abbildung 7.3 dargestellte numerische Anpassung $f(x) = 100 - 94,05 \cdot e^{-x/3,56}$ zeigt eine Abhängigkeit des Absorptionsverhaltens von der Schichtdicke nach dem Gesetz

von Beer-Lambert. Der resultierende Ordinatenabschnitt ist auf die Absorption A_s des verwendeten Substratträgers (Flintglas) zurückzuführen und beträgt $A_s \approx 6\%$. Für den Absorptionskoeffizienten α gilt nach dem Gesetz von Beer-Lambert:

$$I(d) = I_0 e^{-\alpha d} , \quad (7.1)$$

$$\alpha = \frac{1}{d} \ln \frac{I_0}{I(d)} . \quad (7.2)$$

Damit ergibt sich bei einer Schichtdicke $d = 5 \mu\text{m}$ eine Intensität $I = 0,29 \cdot I_0$ und somit ein Absorptionskoeffizient von $\alpha = 2,10 \cdot 10^5 \text{ m}^{-1}$. Nach Gleichung 4.15 folgt mit einer Dichte der Farbstoffmoleküle im PMMA-Film $N_0 = 8,87 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ ein Absorptionsquerschnitt σ_p des untersten Singulett-Zustandes bei der Pumpwellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ von $\sigma_p = 2,4 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$. Der experimentell bestimmte Wert des Wirkungsquerschnitts σ_p für Rhodamin 6G in PMMA ist kleiner als die bekannten Werte für den Wirkungsquerschnitt σ_p für Rhodamin 6G in Ethanol: $\sigma_p = 3,85 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ (LambdaChrome Laser Dyes, [165]), $\sigma_p = 2,6 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ (Abbildung 4.3, [171]) und $\sigma_p = 3,5 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ (Abbildung 4.4, [172]).

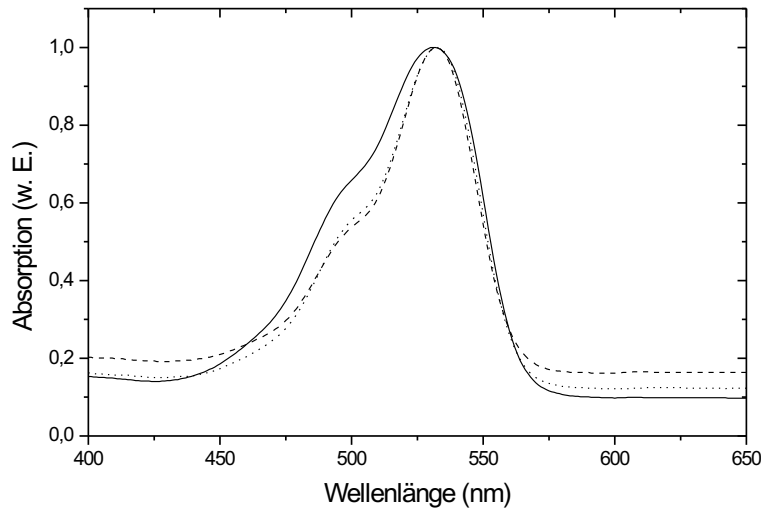


Abbildung 7.2: Absorptionsspektren von Rhodamin 6G in Polymethylmethacrylat verschiedener Molekulargewichte (schwarz: MW=25000 g/mol, gestrichelt: MW=100000 g/mol, gepunktet: MW=350000 g/mol).

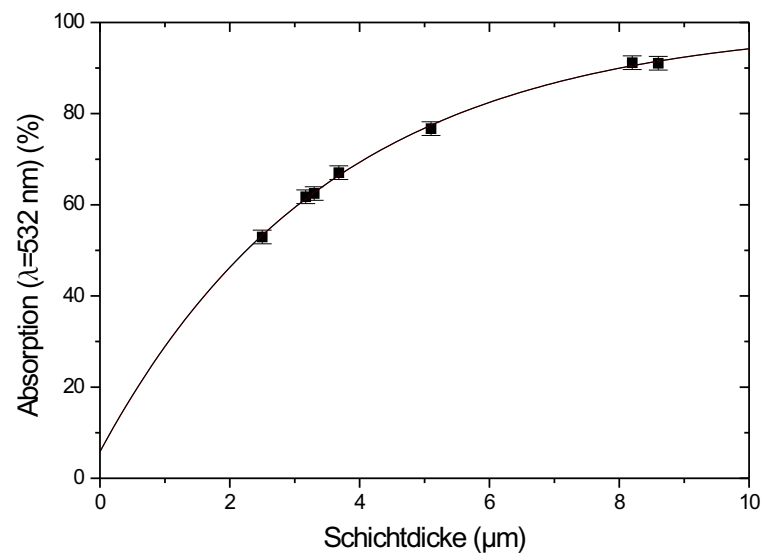


Abbildung 7.3: Absorptionsverhalten für $\lambda = 532 \text{ nm}$ für verschiedene Schichtdicken. Die durchgezogene Linie zeigt eine numerische Anpassung nach dem Gesetz von Beer-Lambert.

7.2 Spektrale Charakterisierung

In Abschnitt 5.1 wurde für die verwendete Prismenkonfiguration ein minimaler und maximaler Streifenabstand $\Lambda_{\min} = 148,22$ nm bzw. $\Lambda_{\max} = 220,85$ nm in Abhängigkeit vom Einkoppelwinkel α berechnet. Daraus ergibt sich für die DFB-Laserwellenlängen in Luft: $\lambda_{\text{DFB,Luft},\min} = 441,70$ nm bzw. $\lambda_{\text{DFB,Luft},\max} = 658,13$ nm. Dieses theoretische Durchstimmverhalten wird durch das Verstärkungsprofil, d.h. das Emissionsspektrum, des verwendeten Laserfarbstoffes Rhodamin 6G (Abbildung 7.1) begrenzt.

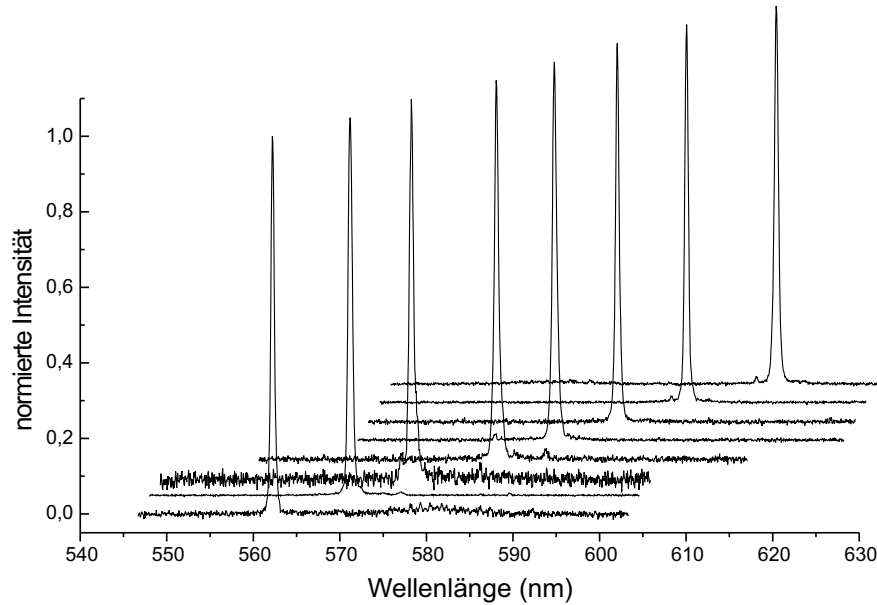


Abbildung 7.4: Normierte DFB-Wellenlänge bei Variation des Einkoppelwinkels α .
Nach hinten versetzte Kurven repräsentieren eine Verkleinerung des Winkels α .

Abbildung 7.4 zeigt das spektrale Verhalten des normierten DFB-Ausgangssignals bei Variation des Einkoppelwinkels α . Dazu wurde das mit der im vorherigen Abschnitt 7.1 beschriebenen Lösung beschichtete Prisma geeignet im Strahlengang des Microchiplasers gedreht und das DFB-Signal mit dem Monochromator vermessen. Es ergibt sich eine minimale und maximale Emissionswellenlänge von $\lambda_{\min} = 562$ nm bzw. $\lambda_{\max} = 626$ nm, zwischen denen die Emissionswellenlänge durchgestimmt werden kann. Die spektrale Breite dieser Emissionswellenlänge ist $\Delta\lambda = 0,03$ nm. Die Messung wurde für Lösungen mit gleichem Mischungsverhältnis (12 mg Rhodamin 6G, 2 g PMMA und 7,5 ml CHCl_3) aber mit PMMA mit den Molekulargewichten $\text{MW}=25000$ g/mol und $\text{MW}=350000$ g/mol wiederholt. Dabei zeigt sich keine Abhängigkeit des Durchstimmverhaltens der DFB-Wellenlänge von dem PMMA-Molekulargewicht. Die gemessene Polarisationsrichtung des emittierten DFB-Signals ist in dieser Pumpanordnung im Wesentlichen parallel zur induzierten Gitterstruktur und parallel zur Polarisationsrichtung des induzierten Lichtfeldes, d.h. parallel zur y -Richtung in Abbildung 5.12.

Zur Bereitstellung höherer Pumpenergien wurde der Microchiplaser durch einen frequenzverdoppelten Nd:YLF-Laser ersetzt. Die technischen Daten dieses Systems sind in Tabelle 7.1 aufgeführt.

Laserwellenlänge λ (nm)	527
Wiederholrate (Hz)	100
Pulsbreite (ps)	100
mittlere Ausgangsleistung (mW)	4,5
Energie pro Puls (μ J)	45
Pulsspitzenleistung (kW)	450

Tabelle 7.1: Technische Daten des verwendeten Nd:YLF-Lasersystems [181].

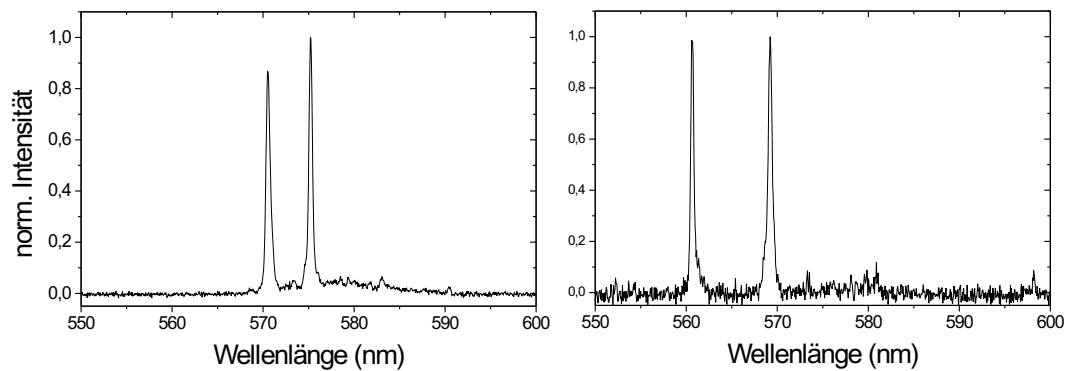


Abbildung 7.5: Beispiele für den Multimodebetrieb der DFB-Prismenkonfiguration für verschiedene Einkoppelwinkel α bei Einsatz des Nd:YLF-Lasersystems als optische Pumpquelle.

Bei Verwendung des Nd:YLF-Lasers als Pumpquelle wird das stabile Anschwingen mehrerer Wellenlängen mit dem Monochromatorsystem beobachtet. Das Anschwingen mehrerer Wellenlängen kann jedoch durch kleine Änderungen in der Einkopplung des Pumplichtes in das Prisma unterdrückt werden. Zwei Beispiele für das Anschwingen mehrerer Wellenlängen sind in Abbildung 7.5 dargestellt, wobei die anschwingenden Wellenlängen gleiche Intensitäten und einen spektralen Abstand von bis zu $\Delta\lambda \approx 9$ nm (rechte Darstellung in Abbildung 7.5) haben. Die Beobachtung dieses Verhaltens lässt sich auf die Trägheit des Monochromatorsystems und die instabile Ausgangswellenlänge des Nd:YLF-Lasers zurückführen: das spektrale Antwortverhalten der DFB-Schicht nach Einstrahlung eines einzelnen Pumpimpulses kann aufgrund der Wiederholrate des Lasersystems von $\nu = 100$ Hz mit dem Monochromatorsystem nicht aufgelöst werden, so dass die in Abbildung 7.5 dargestellten Spektren aus der Mittelung über mehrere Pumpimpulse entstehen. Die Detektion mehrerer DFB-Wellenlängen wird auf die Induktion von Interferenzgittern mit

unterschiedlichen Streifenabständen zurückgeführt. Die Entstehung dieser Gitter resultiert aus dem spektralen zeitlichen Verhalten des Nd:YLF-Lasers, welcher zu Modensprüngen während des Betriebs neigt. Es bleibt zu klären, ob die Intensität dieser Moden in den beobachteten Intensitäten des DFB-Signals resultiert: Gegen diese Annahme spricht, dass die stabile, nahezu gleich große Intensität beider DFB-Wellenlängen für mehrere aufeinanderfolgende Messungen beobachtet wurde. Bei Schwankungen der Ausgangswellenlänge des Nd:YLF-Systems wird jedoch erwartet, dass sich diese Schwankungen in der Intensitätsverteilung des DFB-Signals widerspiegeln.

Durch kleine Variationen in der Einkopplung des Pumplichtes in das Prisma wird das Anschwingen mehrerer DFB-Wellenlängen unterdrückt. Diese Beobachtung deutet auf spektral unterschiedliche Verluste hin, welche durch die nicht vorhandene Wellenleiterstruktur innerhalb der aktiven Schicht entstehen können. Eine mögliche Interpretation der Ergebnisse ist in Abschnitt 7.7.3 dargestellt.

Die weiterführende Charakterisierung des Nd:YLF-Lasersystems und die Untersuchung des Verhaltens der farbstoffdotierten Sol-Gel- und PMMA-Schichten für hohe Pumpleistungen ist Bestandteil der in Arbeit befindlichen Diplomarbeit von A. Steinmann [181].

7.3 Zeitliche Charakterisierung

Für die zeitliche Charakterisierung der emittierten DFB-Laserpulse wurde das Ausgangssignal der DFB-Prismenkonfiguration mit der Streackkamera vermessen (Abschnitt 5.2.2) und mit den numerisch gewonnenen Daten des Ratengleichungsmodells (Abschnitt 4.2) verglichen. Dazu wurden die notwendigen Parameter in Experimenten an farbstoffdotierten PMMA-Schichten bestimmt oder der Literatur entnommen (Tabelle 7.2). Die in Tabelle 7.2 aufgeführten Parameterwerte gelten für eine neue Rhodamin 6G-dotierte PMMA-Schicht. Mit zunehmender Anzahl von eingestrahltten Pumpimpulsen bleicht die Schicht aus und das DFB-Signal wird nicht mehr detektiert: dieses Verhalten ist auf die Abnahme der Dichte der Farbstoffmoleküle N_0 im PMMA-Film und die Abnahme des Kontrastverhältnisses V zurückzuführen. Die gleichzeitigen zeitaufgelösten Messungen des zeitlichen und spektralen Verhaltens des DFB-Signals mit der Streackkamera und des Kontrastverhältnisses V mit dem optischen Nahfeldmikroskop werden in Abschnitt 7.6.1 diskutiert.

N_0	$8,87 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$	Dichte der Farbstoffmoleküle im PMMA-Film (Abschnitt 7.1)
σ_p	$2,4 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$	Absorptionsquerschnitt des untersten Singulett-Zustandes bei der Pumpwellenlänge (Abschnitt 7.1)
σ_e	$1,13 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$	Wirkungsquerschnitt des ersten angeregten Singulett-Zustandes für die induzierte Emission für $\lambda = 532 \text{ nm}^a$
σ_a	$0,73 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$	Wirkungsquerschnitt für die Reabsorption der Laserstrahlung für $\lambda = 532 \text{ nm}^a$
τ_f	$4,6 \cdot 10^{-9} \text{ s}$	Fluoreszenzlebensdauer des ersten angeregten Singulett-Zustandes ^b
L	2 mm	Länge des gepumpten Volumens ^c
b	0,1 mm	Breite des gepumpten Volumens ^c
a	$4,1 \mu\text{m}$	Eindringtiefe des Pumplichtes in die aktive Schicht nach Gleichung 4.16
n	1,49	Brechungsindex von PMMA [182]
ρ	$1,176 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$	Dichte des dotierten PMMA (experimentell)
κ	$0,28 \frac{\text{W}}{\text{mK}}$	Wärmeleitfähigkeit von PMMA [210]
$\partial n / \partial T$	$-1 \cdot 10^{-5} \frac{1}{^\circ\text{C}}$	Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex von PMMA [210]
c_a	$1,5 \cdot 10^3 \frac{\text{J}}{\text{gK}}$	spezifische Wärmeleitfähigkeit von PMMA [210]
c	$3 \cdot 10^8 \frac{\text{m}}{\text{s}}$	Vakuumlichtgeschwindigkeit
V	0,93	Kontrast des Interferenzmusters (Abschnitt 7.6.1)
Ω	$6,5 \cdot 10^{-10}$	Bruchteil der spontanen Emission, die sich in den räumlichen und spektralen Bereich des DFB-Laserstrahls ausbreitet ^d
h	$6,626 \cdot 10^{-34} \text{ Js}$	Plancksche Konstante

^aDerzeit stehen keine Werte für σ_e und σ_a für Rhodamin 6G in PMMA zur Verfügung. Die Bestimmung dieser Werte wird erschwert durch den Ausbleichprozess des gepumpten Farbstoffes und ist Bestandteil aktueller Forschung [173]. Als Approximation werden Werte, die sich auf Lösung in Ethanol beziehen, verwendet (Abbildung 4.4, [172]).

^bDie Fluoreszenzlebensdauer für Rhodamin 6G in Ethanol und in PMMA mit Molekulargewicht MW=100000 g/mol wurden mit Hilfe der Streackamera und einer Anregungswellenlänge von $\lambda = 532 \text{ nm}$ zu $\tau_f = (4,0 \pm 0,2) \text{ ns}$ in Ethanol und $\tau_f = (4,6 \pm 0,2) \text{ ns}$ in PMMA bestimmt [169].

^cDie Länge L und die Breite b des gepumpten Volumens wurden nach vollständigem Ausbleichen des gepumpten Bereiches mit einem optischen Lichtmikroskop vermessen.

^d ω wird nach Gleichung 4.14, dem Emissionsspektrum in Abbildung 7.1 und dem DFB-Emissionsbereich (Abschnitt 7.2) berechnet.

Tabelle 7.2: Übersicht der benötigten Parameterwerte für die Anwendung des Ratengleichungsmodells auf die Microchiplaser-gepumpte PMMA/Rhodamin 6G-Schicht.

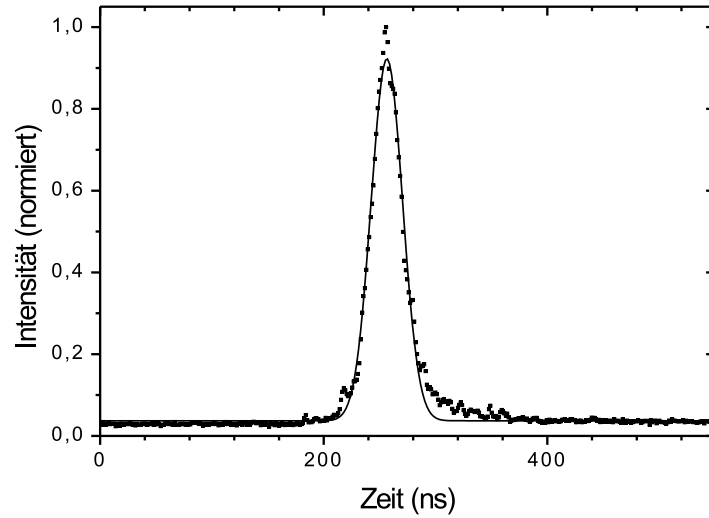


Abbildung 7.6: Messung des Einzelpulses des DFB-Lasers (Punkte) und die numerische Anpassung mit einer Gaußfunktion (durchgezogene Linie). Es ergibt sich eine Halbwertsbreite des Pulses von $\Delta t = 28$ ps. Die Abbildung ist [169] entnommen.

Der derzeit kürzeste mit dieser Konfiguration gemessene Einzelpuls einer Rhodamin 6G-dotierten PMMA-Schicht wurde im Rahmen der Diplomarbeit von T. Voss [169] gemessen und ist in Abbildung 7.6 dargestellt. Es ergibt sich eine Pulsdauer von $\Delta t = 28$ ps. Dabei wurde eine spektrale Breite von $\Delta\lambda = 0,03$ nm gemessen, welche gut mit den in Abschnitt 7.2 gemessenen Breiten $\Delta\lambda$ übereinstimmt. Als kürzester erster Puls eines Pulszuges wurde eine Pulsdauer von $\Delta t = 19$ ps bestimmt [169] (Abbildung 7.7). Der Unterschied in der Pulsdauer des emittierten Einzelpulses im Vergleich zu der Pulsdauer des ersten Pulses eines Pulszuges liegt in der eingestrahlten Pumpimpulsleistung und der Laserschwelle begründet und wird im Folgenden Abschnitt 7.4 anhand des Ratengleichungsmodells erläutert.

Die Bandbreite gepulster Laser ist durch die Verknüpfung der spektralen Breite $\Delta\lambda$ und der Pulsdauer Δt nach unten begrenzt:

$$\Delta\nu \cdot \Delta t \geq a \quad . \quad (7.3)$$

Die Konstante a hängt dabei von dem zeitlichen Verhalten der Pulsform ab: so gilt beispielsweise für einen Gaußpuls: $a = 0,44$ [160].

Die gemessene Pulsdauer von $\Delta t = 20$ ps bei einer DFB-Emissionswellenlänge $\lambda \approx 595$ nm ermöglicht eine theoretische Abschätzung der spektralen Breite $\Delta\lambda$:

$$\Delta\lambda = \frac{0,44 \cdot \lambda_{\text{DFB}}^2}{c \cdot \Delta t} = 0,026 \text{ nm} \quad . \quad (7.4)$$

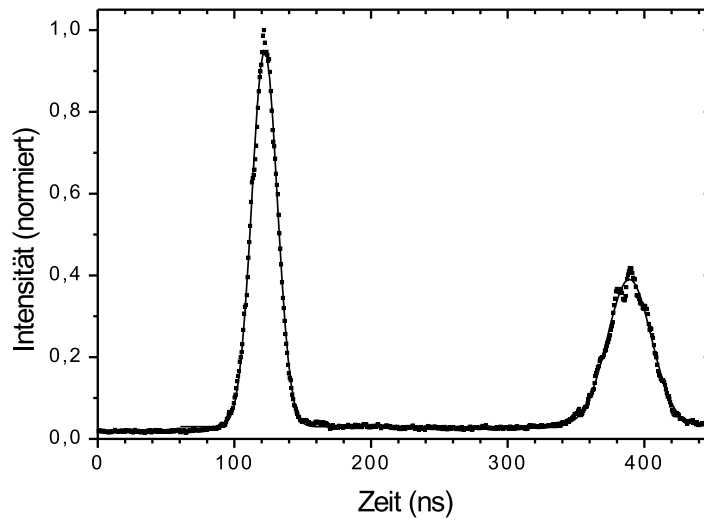


Abbildung 7.7: Messung eines Pulszuges des DFB-Lasers (Punkte) und die numerische Anpassung mit einer Gaußfunktion (durchgezogene Linie). Es ergibt sich eine Halbwertsbreite des Pulses von $\Delta t = 19$ ps. Die Abbildung ist [169] entnommen.

Dabei bezeichnet c die Lichtgeschwindigkeit. Die theoretische spektrale Breite ist kleiner als die experimentell bestimmte Breite $\Delta\lambda = 0,03$ nm. Dies ist zum einen auf das Auflösungsvermögen des Monochromators $\Delta\lambda = 0,02$ nm (Abschnitt 5.2.1) zurückzuführen: die Bestimmung der spektralen Breite erfolgt im Bereich des Auflösungsvermögens des Monochromators. Zudem erfolgt die Bestimmung der Pulsdauer durch die numerische Anpassung mit einer Gaußfunktion: die Gaußfunktion erfasst die gemessenen Daten auf der absteigenden Flanke des Pulses nicht ideal, so dass tendenziell zu große Pulsdauern Δt durch diese Anpassung bestimmt werden, welche in einer zu kleinen spektralen Breite $\Delta\lambda$ resultieren (Gleichung 7.4):

Der hier untersuchte DFB-Prismenlaser emittiert nahezu bandbreitebegrenzte Pulse im Pikosekundenbereich, welche sich spektral über einen Bereich von $\lambda = 562$ nm bis 626 nm kontinuierlich durchstimmen lassen (Abschnitt 7.2).

7.4 Stabilität

Entscheidend für die folgenden nahfeldmikroskopischen Untersuchungen an farbstoff-dotierten Schichten ist neben einer möglichst glatten Oberfläche eine ausreichende optische Stabilität, ohne die die langwierige Justage der Streackamera und des optischen Nahfeldmikroskops und die folgenden Messungen an der DFB-Prismenkonfiguration (Abbildungen

5.11 und 5.12) nicht möglich sind. Zusätzlich wurde die Wiederholrate des Systems auf $\nu \approx 10$ Hz während der Justage und $\nu = 50$ Hz während der Messung mit Hilfe des akusto-optischen Modulators gesenkt (Abschnitt 5.3.1). Die Variation der Wiederholrate zeigte keinen Einfluss auf die Stabilität bzw. Haltbarkeit der Schichten [169].

Im Rahmen der Diplomarbeit von C. Romano [185] wurde der Einfluss der Pumpulsenergie und der Einfluss der Polymerkettenlänge auf die Lebensdauer der Beschichtungen der DFB-Prismenkonfiguration untersucht. Im Folgenden wird als Lebensdauer die Anzahl der Pumpulse bis zum Erreichen der halben maximalen DFB-Intensität definiert.

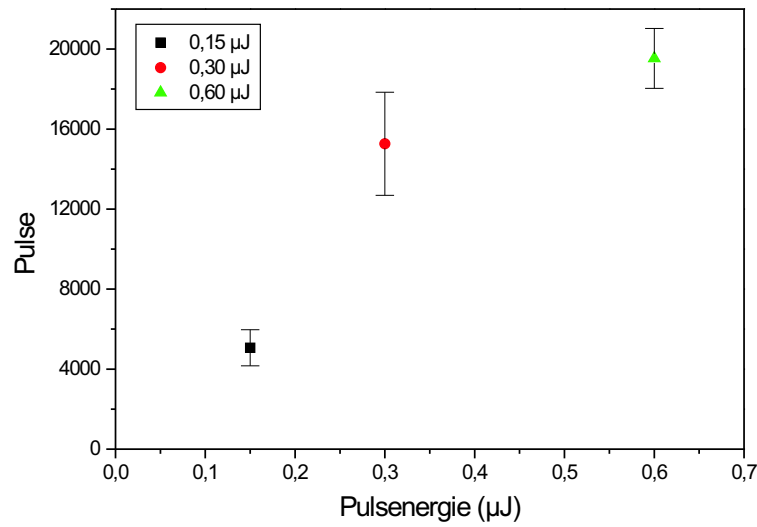


Abbildung 7.8: Einfluss der Pumpulsenergie auf die Lebensdauer der Rhodamin 6G-dotierten PMMA-Beschichtungen der DFB-Prismenkonfiguration. Die Abbildung ist [185] entnommen.

Abbildung 7.8 zeigt die experimentell bestimmte Lebensdauer in Abhängigkeit von der Pumpulsenergie. Es ergibt sich eine erhöhte Lebensdauer der Schicht für größer werdende Pumpulsenergien, d.h. trotz Ausbleichens des Farbstoffes, was die Laserschwelle des Systems erhöht, liegt für höhere Pumpulsenergien Lasertätigkeit für eine größere Anzahl von Pumpulsen vor.

Dieses Phänomen ist mit dem unterschiedlichen zeitlichen Emissionsverhalten verknüpft: Für höhere Pumpulsenergien erfolgt die DFB-Emission in Form von Pulszügen, während bei moderaten Energien Einzelpulse emittiert werden. Das resultiert aus dem Relaxationsverhalten der Dichte der Farbstoffmoleküle im ersten angeregten Singulett-Zustand $N(t)$ (Abschnitt 4.2): bei der Emission eines einzelnen DFB-Pulses wird die Laserschwelle des Systems erst nach Erreichen der Pulsspitzenleistung des Pumpulses erreicht. Die mittlere Verweildauer τ_c der Photonen im DFB-Resonator ist erst zu diesem späteren Zeit-

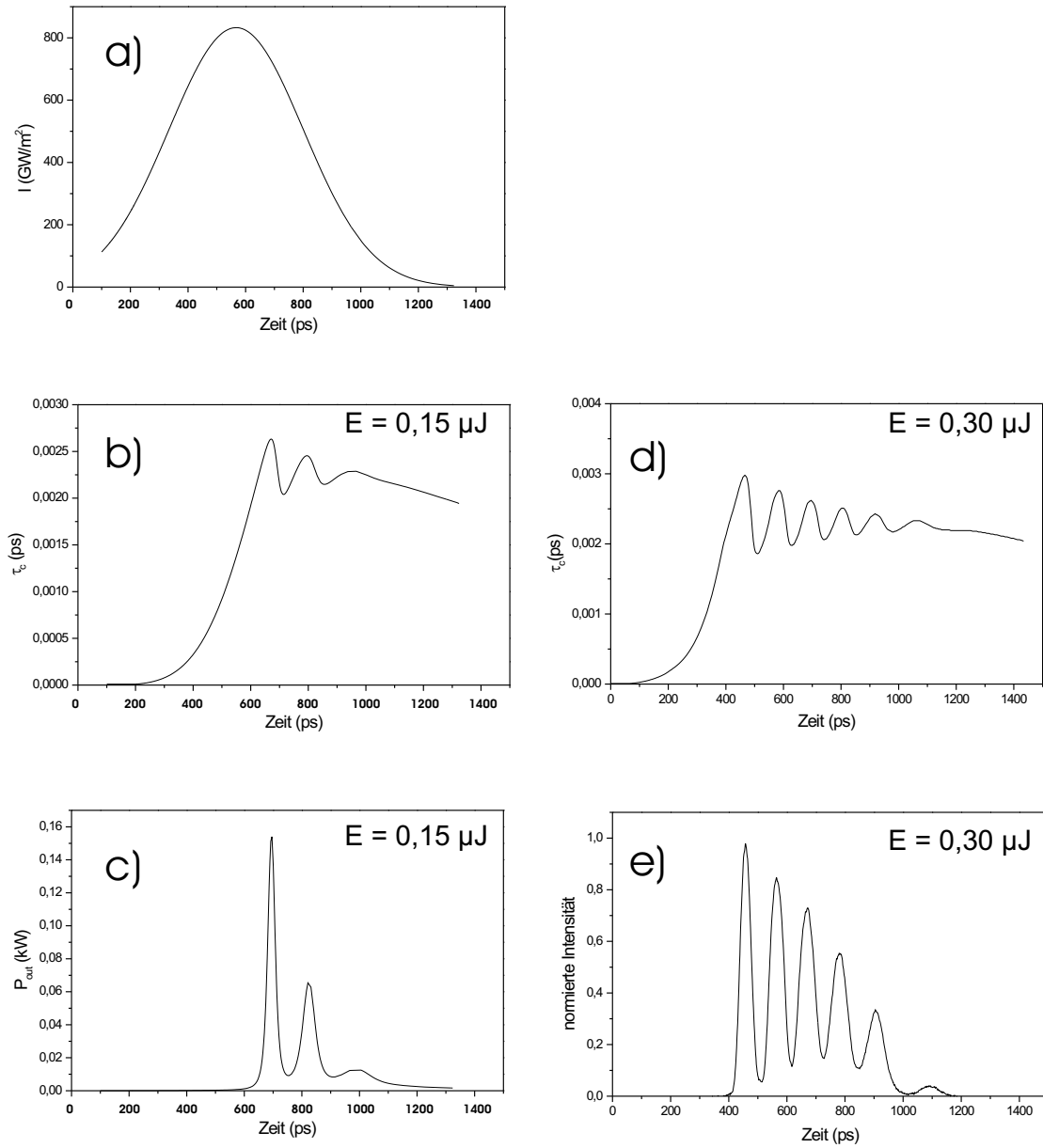


Abbildung 7.9: Simulation der DFB-Laseremission: a) Zeitliches Verhalten der Pumpenergie, b) der Kavitätszerfallszeit τ_c und c) der Ausgangsleistung für eine Pumpenergie von $E = 0,15 \mu\text{J}$. d) Zeitliches Verhalten der Kavitätszerfallszeit τ_c und e) der Ausgangsleistung für eine Pumpenergie von $E = 0,30 \mu\text{J}$. Die Abbildungen sind [185] entnommen und modifiziert.

punkt groß genug, dass eine Besetzungsinversion erreicht und ein Laserpuls emittiert wird. Die Emission des DFB-Laserpulses zerstört die lichtinduzierte DFB-Struktur (engl.: self-cavity-dumping) und reduziert die mittlere Verweildauer τ_c , wodurch die Laserschwelle wieder unterschritten wird.

Für den Fall, dass die Leistung des Pumppulses (Abbildung 7.9a) ausreichend groß ist, kommt es bereits vor Erreichen der Pulsspitzenleistung zu der Emission eines DFB-Pulses. Besitzt der Pumppuls nach der Emission des DFB-Pulses noch genug Energie, kommt es zu einem erneuten Aufbau der Gitterstruktur, welche durch die Abgabe eines weiteren Laserpulses wieder zerstört wird. Dieser Vorgang wiederholt sich so lange, bis die Laserschwelle unterschritten wird.

Mit der Simulation des Ratengleichungsmodells lässt sich auch die im vorherigen Abschnitt beobachtete Änderung der Pulsbreite innerhalb eines Pulszuges erklären: Die Pulslänge Δt wird maßgeblich durch das zeitliche Verhalten der Kavitätszerfallszeit τ_c bestimmt (Abbildung 7.9b): τ_c steigt für hohe Intensitäten schnell an, bei Erreichen der Laserschwelle wird ein DFB-Puls emittiert und τ_c sinkt unterhalb die Laserschwelle und steigt wieder in Abhängigkeit von der eingestrahnten Pumpintensität. Ist diese Intensität nun niedriger, so ist die zeitliche Veränderung von τ_c ebenfalls kleiner, d.h. τ_c nähert sich mit einer kleineren Steigung der Laserschwelle. Diese Steigung, mit welcher τ_c die Laserschwelle erreicht bzw. überschreitet, ist für die resultierende Pulsdauer verantwortlich. Die Simulation ergibt, dass die Laserschwelle bei der Emission von zwei DFB-Pulsen für den zweiten Puls erst nach Erreichen der Pulsspitzenleistung des Pumppulses erreicht wird (Abbildung 7.9b). Es liegt demnach eine niedrigere Pumpintensität und eine kleinere zeitliche Änderung von τ_c vor, was in einer längeren Pulsdauer des zweiten emittierten Pulses resultiert.

Mit steigender Pumpulsenergie erhöht sich die Anzahl der emittierten DFB-Pulse und die Emission setzt immer früher ein. Dieses Verhalten wird aus der Simulation des DFB-Signals unter Verwendung des Ratengleichungsmodells deutlich: Abbildung 7.9a zeigt das zeitliche Verhalten der Pumpulsintensität, Abbildung 7.9b zeigt das Verhalten der Kavitätszerfallszeit τ_c und Abbildung 7.9c das Verhalten des DFB-Signals bei einer eingestrahnten Pumpenergie von $E = 0,15 \mu\text{J}$. Die Emission des ersten DFB-Pulses erfolgt erst nach Erreichen der Pulsspitzenleistung und es werden drei Pulse emittiert. In Abbildung 7.9d ist das Verhalten der Kavitätszerfallszeit τ_c und in Abbildung 7.9e das Verhalten des DFB-Signals bei einer eingestrahnten Pumpenergie von $E = 0,30 \mu\text{J}$ dargestellt: die Emission des ersten DFB-Pulses erfolgt vor Erreichen der Pulsspitzenleistung und es werden sechs Pulse emittiert.

Im Zustand der Besetzungsinversion besitzt das Medium einen deutlich niedrigeren Absorptionskoeffizienten, d.h. das Medium ist transparenter für das Pumplicht. Dieser Zustand tritt im Fall der Emission einer großen Anzahl von DFB-Pulsen, d.h. für höhere Pumpulsleistungen, häufiger auf. Diese im zeitlichen Mittel höhere Transparenz während der Pumpulsdauer reduziert das Ausbleichen des Farbstoffes. Zusätzlich wird durch das frühzeitige Einsetzen der DFB-Emission die höhere induzierte Pumpenergie abgebaut.

Es ist jedoch nicht zu erwarten, dass die Lebensdauer der Schichten mit steigender Pumpulsenergie beliebig verlängert werden kann, da sich für steigende Pumpulsenergien die

Anzahl der emittierten DFB-Pulszüge nicht beliebig erhöhen wird und der Effekt des Ausbleichens wieder zum Tragen kommt.

Das hier dargestellte Verhalten deutet auf eine Erhöhung der Lebensdauer bei gleichzeitiger Emission eines einzelnen kurzen DFB-Pulses hin, wenn das Medium mit einem kürzeren, stärkeren Puls optisch gepumpt wird: durch die hohe Intensität und die Dauer des Pumpulses wird die Kavitätszerfallszeit τ_c schnell erreicht und ein kurzer Puls emittiert¹. Aufgrund der kleinen Pumpulsdauer wird kein nachfolgender Puls emittiert und der Farbstoff nach Emission des DFB-Pulses weniger stark ausgebleicht. Die Untersuchung dieses Verhaltens wird derzeit im Rahmen einer Diplomarbeit von A. Steinmann durchgeführt [181].

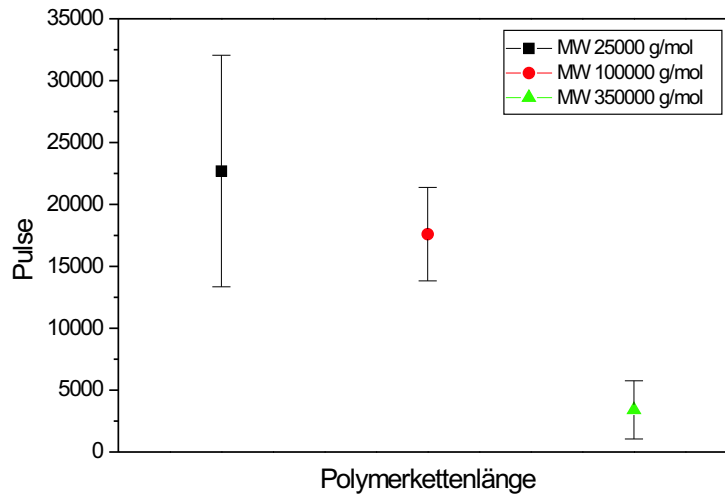


Abbildung 7.10: Einfluss der Polymerkettenlänge auf die Lebensdauer der Rhodamin 6G-dotierten PMMA-Beschichtungen der DFB-Prismenkonfiguration bei einer Pumpenergie von $E_p = 0,3 \mu J$. Die Abbildung ist [185] entnommen.

Die experimentell bestimmte Lebensdauer der DFB-Prismenkonfiguration in Abhängigkeit vom Molekulargewicht MW des verwendeten Polymethylmethacrylats ist in Abbildung 7.10 dargestellt. Zur Untersuchung wurden Schichten gleicher Dicke $d \approx 5 \mu m$ auf BK7-Glasprismen hergestellt. Es zeigt sich eine starke Abhängigkeit von der verwendeten Polymerkettenlänge: die Lebensdauer für eine mit einem PMMA-Molekulargewicht MW=350000 g/mol hergestellte Beschichtung ist ca. 80% niedriger als die mit einem PMMA-Molekulargewicht von MW=25000 g/mol oder MW=100000 g/mol hergestellte. Auffällig ist die im Vergleich zu MW=100000 g/mol und MW=350000 g/mol große Stan-

¹Dies konnte für Farbstoffe in Ethanol durch das optische Pumpen eines DFB-Lasers mit einem DFB-Laser bereits gezeigt werden: es wurden Pulslängen von $\Delta t \approx 300$ fs erreicht [211].

dardabweichung der Messdaten für $MW=25000$ g/mol.

Die Unterschiede in der Lebensdauer können zum einen auf die Präparation der Schichten und zum anderen auf eine Wechselwirkung des Laserfarbstoffes mit dem Polymer zurückgeführt werden. So lassen sich Schichten mit einem PMMA-Molekulargewicht von $MW=25000$ g/mol bei der gewünschten Schichtdicke $d \approx 5 \mu\text{m}$ aufgrund ihrer niedrigen Viskosität und Schichten mit einem PMMA-Molekulargewicht von $MW=350000$ g/mol aufgrund ihrer hohen Viskosität schwieriger präparieren (Abschnitt 5.3.2). Lichtmikroskopische Untersuchungen zeigen für $MW=25000$ g/mol eine Schlierenbildung innerhalb der sonst topographiefreien Oberfläche. Für $MW=350000$ g/mol zeigen lichtmikroskopische Untersuchungen der Schichten häufig Inhomogenitäten in der Topographie. Treten derartige Inhomogenitäten auf, wird das Prisma gereinigt und mit einer neuen Schicht versehen. Alle PMMA-Schichten haften gut auf den verwendeten BK7-Glasprismen. Die Beständigkeit gegen äußere mechanische Einflüsse wurde wie bei den Sol-Gel-Schichten (Abschnitt 6.1) mit einem optischen Tuch, einer Kunststoffpinzette und der Spitze eines Metallmessers untersucht. Dabei zeigen sich die Schichten beständig gegen Berührungen mit dem optischen Tuch und der Kunststoffpinzette. Mit der Spitze des Metallmessers können oberflächliche und breite tiefe Kratzer im Kontaktbereich erzielt werden, wobei sich die Schicht nicht löst. Eine Lösung der PMMA-Schicht kann innerhalb weniger Minuten in Aceton erzielt werden. Ein Vergleich beider Schichten, Sol-Gel und PMMA, zeigt für die untersuchten Schichtdicken von einigen Mikrometern eine deutlich bessere mechanische Beständigkeit und Elastizität der PMMA-Schichten gegen äußere Einflüsse.

Die Viskosität hat einen Einfluss auf die Wechselwirkung des Farbstoffes mit dem Trägermaterial (Abschnitt 4.1): Die Orientierung des Farbstoffmoleküls im optischen Feld kann für die unterschiedlichen Viskositäten der verwendeten Schichten, Sol-Gel und verschiedene PMMA-Molekulargewichte, in einer Bewegungseinschränkung des Farbstoffmoleküls resultieren, welche zu einer Zerstörung führt (Abschnitt 4.1). Dieser Effekt spiegelt sich auch bei der Bestimmung der Wirkungsquerschnitte σ_p , σ_a und σ_e für Farbstoffe in festen Trägermaterialien wieder [173]. So zeigte sich bei den Untersuchungen der Sol-Gel-Schichten (Abschnitt 6.1) eine hohe Viskosität und eine niedrige Stabilität der Schicht und für PMMA-Schichten mit $MW=25000$ g/mol und $MW=100000$ g/mol eine vergleichsweise niedrige Viskosität und hohe Stabilität. Mögliche Abhängigkeiten werden derzeit durch die Bestimmung der Orientierungsrelaxationszeiten τ_{or} (Gleichung 4.4) für verschiedene farbstoffdotierte Schichten im Rahmen einer Diplomarbeit von A. Pohlkötter [212] untersucht. Ein Einfluss des PMMA-Molekulargewichts auf die Pulsbreite der emittierten DFB-Pulse konnte nicht detektiert werden [185].

7.5 Nahfeldmikroskopische Untersuchungen

Zur Bestimmung des lokalen Absorptions- (Abschnitt 7.5.1) und Fluoreszenzverhaltens (Abschnitt 7.5.2) wurden auf dünne Glasträger aufgeschleuderte farbstoffdotierte PMMA-Schichten mit Schichtdicken $d \approx 5 \mu\text{m}$ präpariert (Abschnitt 5.3.2). Ziel dieser nahfeldmikroskopischen Untersuchungen war es, zukünftig Schichten derart zu präparieren, dass sie eine kleine Oberflächenrauigkeit und eine homogene Farbstoffverteilung aufweisen. Derartige Schichten ermöglichen eine orts aufgelöste Detektion des Kontrastes und der Eindringtiefe des evaneszenten Feldes des Pumplichtes (Abschnitte 7.6.1 und 7.6.2). Für die folgenden Messungen wurde das Microchip Lasersystem mit einer Wiederholrate $\nu = 200 \text{ Hz}$ und einer Pumpimpulsenergie $P = 0,8 \mu\text{J}$ betrieben. In den folgenden Abschnitten 7.5.1 und 7.5.2 wurden bewusst Datensätze ausgewählt, welche eine topographische und/oder optische Störung, z.B. durch den Einschluss eines Fremdkörpers in der Schicht, aufweisen.

7.5.1 Absorptionsverhalten

Zur Bestimmung des Absorptionsverhaltens der farbstoffdotierten PMMA-Schicht bei der Pumpwellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ wurde das optische Nahfeldmikroskop, wie bereits in Abschnitt 6.2.1 erläutert, im Durchlichtmodus betrieben.

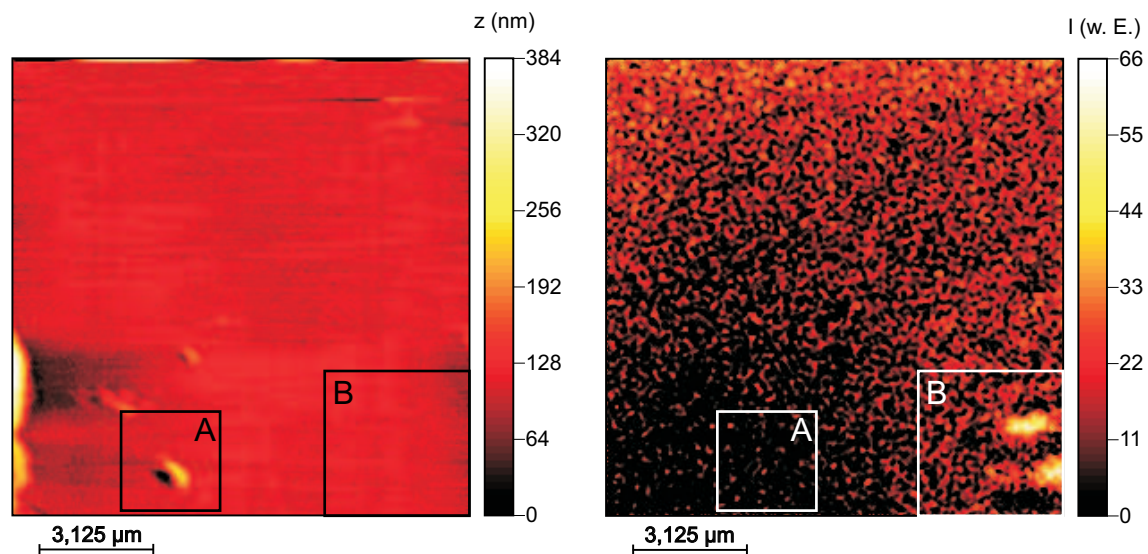


Abbildung 7.11: Nahfeldmikroskopische Absorptionsmessung der farbstoffdotierten PMMA-Schicht ($MW=25000 \text{ g/mol}$) mit Hilfe eines (532 nm)-Interferenz-Filters: Die linke Abbildung zeigt das Amplitudensignal der Topographie. Die rechte Abbildung zeigt das über einen Photomultiplier detektierte optische Signal.

Abbildung 7.11 zeigt die Absorptionsmessung der farbstoffdotierten PMMA-Schicht mit $MW=25000 \text{ g/mol}$. Die Oberflächenrauigkeit in störungsfreien Bereichen, z.B. im middle-

ren Drittel des Bildes, ist $\Delta z < 6$ nm. Im unteren linken Drittel (Bereich A) befindet sich eine topographische Störung, welche jedoch keine Störung im optischen Bild hervorruft. Im optischen Bild befinden sich im unteren rechten Drittel (Bereich B) zwei Störungen, welche auf Inhomogenitäten in der Farbstoffverteilung schließen lassen, da in diesem Bereich keine signifikanten Störungen in der Topographie beobachtet werden. Das Signal in störungsfreien Bereichen des optischen Bildes ist auf das Rauschen des Photomultiplierauswertesystems zurückzuführen und wird in den folgenden Erläuterungen zu Abbildung 7.12 näher ausgewertet.

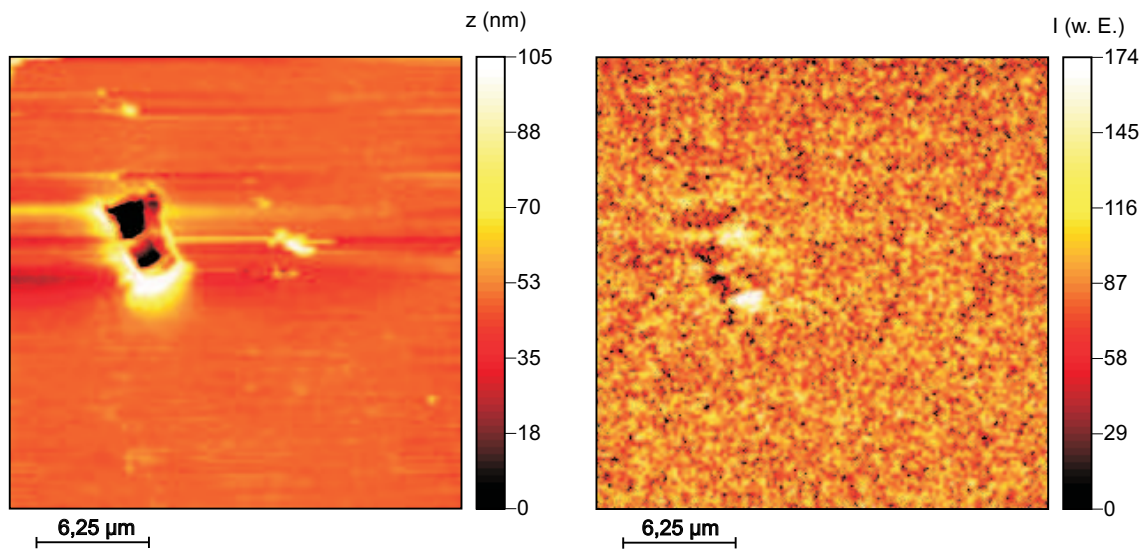


Abbildung 7.12: Nahfeldmikroskopische Absorptionsmessung der farbstoffdotierten PMMA-Schicht ($MW=350000$ g/mol) unter Verwendung eines (532 nm)-Interferenz-Filters: Die linke Abbildung zeigt das Amplitudensignal der Topographie. Die rechte Abbildung zeigt das über einen Photomultiplier detektierte optische Signal.

Abbildung 7.12 zeigt die Absorptionsmessung der farbstoffdotierten PMMA-Schicht mit $MW=350000$ g/mol. Die Oberflächenrauigkeit in störungsfreien Bereichen, z.B. im unteren Drittel des Bildes, ist $\Delta z < 8$ nm. Allerdings zeigen sich über den gesamten Rasterbereich kleine topographische Störungen. Die im mittleren Drittel befindliche topographische Störung resultiert in einer optischen Störung. Das optische Signal im übrigen Bildbereich ist auf das Rauschen des Photomultiplierauswertesystems zurückzuführen: zur Analyse dieses Rauschens wurden optische Bilder in verschiedenen Rasterbereichen aufgenommen und in störungsfreien Bereichen Korrelationen bestimmt. Zur Auswertung einzelner Bilder wurden Fouriertransformationen durchgeführt, diverse Filterfunktionen eingesetzt und schließlich mit einer inversen Fouriertransformation die Daten wieder in den Bildraum transformiert und verglichen. Ebenso wurden die optischen Datensätze mit der Autokorrelationsfunktion untersucht, mit deren Hilfe sich periodische Strukturen verstärken und Singularitäten detektieren lassen. In allen Fällen konnten keine signifikanten Merkmale in störungsfreien Bereichen des optischen Bildes detektiert werden.

Es zeigt sich, dass die gleichzeitige Detektion des topographischen und des optischen Signals unter Verwendung des optischen Nahfeldmikroskops Rückschlüsse auf Inhomogenitäten im optischen Verhalten der untersuchten Probe ermöglichen: so ist die im optischen Bild der Abbildung 7.12 detektierte Inhomogenität auf eine topographische Störung zurückzuführen. Im topographischen Bild der Abbildung 7.11 kann in Bereich B keine Inhomogenität detektiert werden: die Inhomogenität des optischen Signals im Bereich B kann auf die optischen Eigenschaften der Probe, in diesem Fall eine inhomogene Verteilung des Farbstoffes, zurückgeführt werden.

7.5.2 Fluoreszenzverhalten

Zur Bestimmung des Fluoreszenzverhaltens der farbstoffdotierten PMMA-Schicht bei der Pumpwellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ wurde das optische Nahfeldmikroskop im Durchlichtmodus, wie bereits in Abschnitt 6.2.2 erläutert, betrieben.

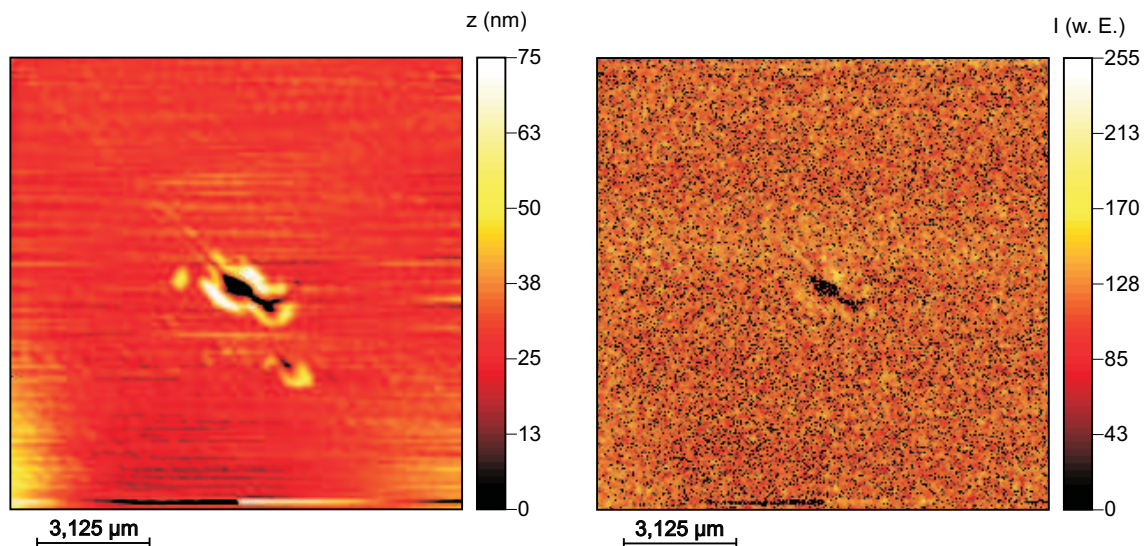


Abbildung 7.13: Nahfeldmikroskopische Fluoreszenzmessung der farbstoffdotierten PMMA-Schicht ($MW=25000 \text{ g/mol}$) unter Verwendung eines RG570-Filters: Die linke Abbildung zeigt das Amplitudensignal der Topographie. Die rechte Abbildung zeigt das über einen Photomultiplier detektierte optische Signal.

Abbildung 7.13 zeigt die Fluoreszenzmessung der farbstoffdotierten PMMA-Schicht mit $MW=25000 \text{ g/mol}$. Die Oberflächenrauigkeit in störungsfreien Bereichen, z.B. im oberen Drittel des Bildes, liegt wiederum bei $\Delta z < 6 \text{ nm}$ (vgl. Abbildung 7.11). Im mittleren Drittel des topographischen Bildes befinden sich zwei topographische Störungen, welche ebenfalls im optischen Bild detektiert werden.

Abbildung 7.14 zeigt die Fluoreszenzmessung der farbstoffdotierten PMMA-Schicht mit $MW=350000 \text{ g/mol}$. Die im mittleren Drittel vorhandene topographische Störung wird im optischen Bild nicht detektiert. Das kann auf eine Störung zurückgeführt werden, welche

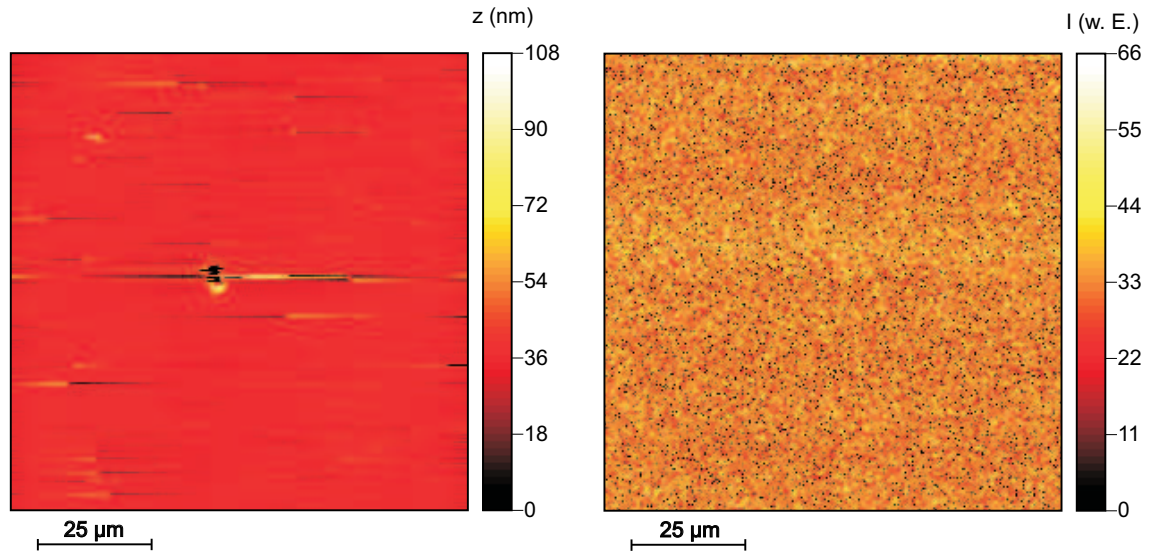


Abbildung 7.14: Nahfeldmikroskopische Fluoreszenzmessung der farbstoffdotierten PMMA-Schicht ($MW=350000\text{ g/mol}$) unter Verwendung eines RG570-Filters: Die linke Abbildung zeigt das Amplitudensignal der Topographie. Die rechte Abbildung zeigt das über einen Photomultiplier detektierte optische Signal.

sich direkt auf der Oberfläche der Schicht befindet und das starke Fluoreszenzsignal der Schicht nicht stört.

Die Messung wurde für einen deutlich feineren Rasterbereich an einer neuen Probe wiederholt (Abbildung 7.15): auch hier zeigte sich im optischen Bild kein Auftreten der im topographischen Bild detektierten Störungen am Rand des Rasterbereichs.

Zur Veranschaulichung des Rauschens des Photomultiplierauswertesystems kann Abbildung 7.15 mit einem Rasterbereich von $6,125 \times 6,125\ \mu\text{m}^2$ zum Vergleich mit der Abbildung 7.14 herangezogen werden, welche einen Rasterbereich $100 \times 100\ \mu\text{m}^2$ darstellt. Beide optischen Bilder zeigen nach einer mathematischen Analyse (Abschnitt 7.5.1) keine signifikanten Merkmale, so dass systematische Fehler ausgeschlossen werden können.

Im Vergleich zu den in Abschnitt 6.2 untersuchten Sol-Gel-Schichten weisen die PMMA-Schichten eine deutlich niedrigere Oberflächenrauigkeit auf. Da das Fluoreszenzsignal über die gesamte Schichtdicke detektiert wird, wird ein homogenes Fluoreszenzsignal erwartet. Die PMMA-Schichten mit $MW=25000\text{ g/mol}$ zeigen trotz der Schichtdicke von $d \approx 5\ \mu\text{m}$ vereinzelt Inhomogenitäten in der Farbstoffverteilung (optisches Bild in Abbildung 7.11). Die PMMA-Schichten mit $MW=350000\text{ g/mol}$ beinhalten kleine topographische Störungen (topographisches Bild in Abbildung 7.12) und neigen bei der Präparation zu Schlierenbildung, wofür die niedrige Viskosität verantwortlich sein könnte. Die längste Lebensdauer mit der kleinsten Standardabweichung zeigten die Schichten aus PMMA mit einem Molekulargewicht von $MW=100000\text{ g/mol}$ (Abschnitt 7.4, Abbildung 7.10). Diese Schichten zeigten in nahfeldmikroskopischen Untersuchungen

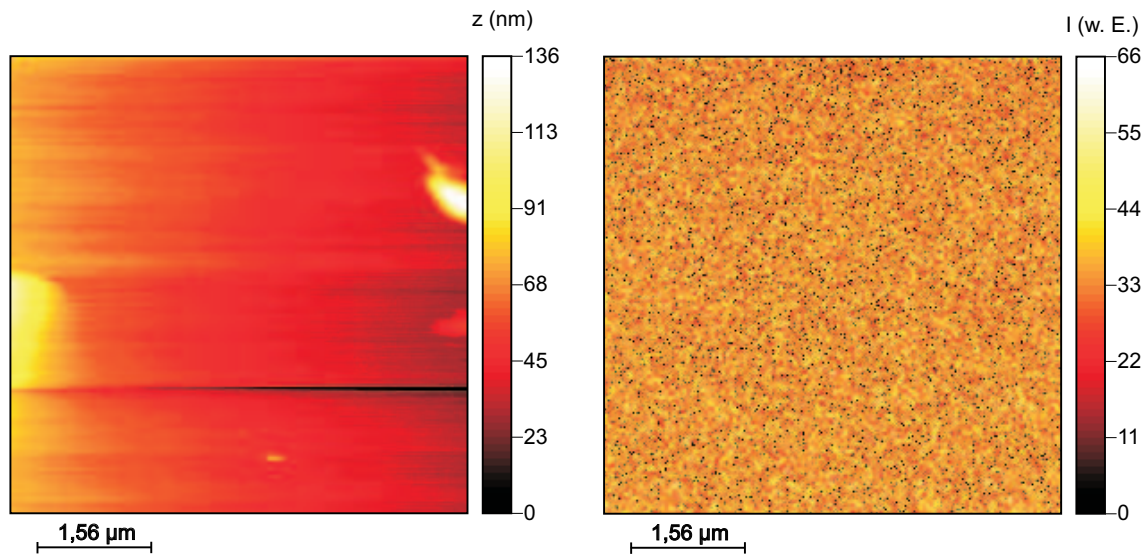


Abbildung 7.15: Nahfeldmikroskopische Fluoreszenzmessung der farbstoffdotierten PMMA-Schicht ($MW=350000$ g/mol) unter Verwendung eines RG570-Filters: Die linke Abbildung zeigt das Amplitudensignal der Topographie. Die rechte Abbildung zeigt das über einen Photomultiplier detektierte optische Signal. Verglichen mit Abbildung 7.14 handelt es sich hier um eine Aufnahme mit wesentlich höherer Auflösung.

eine vergleichbare Oberflächenrauigkeit wie die Polymerschichten mit einem Molekulargewicht von $MW=25000$ g/mol und es konnten keine Inhomogenitäten in der Farbstoffverteilung detektiert werden (vgl. optisches Bild in Abbildung 7.11).

In den folgenden nahfeldmikroskopischen Untersuchungen der DFB-Prismenkonfiguration im Laserbetrieb werden Rhodamin 6G-dotierte Polymerbeschichtungen mit $MW=100000$ g/mol eingesetzt.

7.6 Nahfeldmikroskopische Untersuchungen im Laserbetrieb

In den folgenden Messungen wurde die in Abschnitt 7.1 beschriebene Lösung (12 mg Rhodamin 6G, 2 g PMMA mit MW=100000 g/mol und 7,5 ml CHCl_3) zur Beschichtung von BK7-Glasprismen eingesetzt. Dabei wurden Schichtdicken von $d \approx 5 \mu\text{m}$ hergestellt. Da die Schichtdicke d maßgeblichen Einfluss auf die mathematische Modellierung der Messergebnisse (Abschnitt 7.7) besitzt, wurde die Schichtdicke d für die relevanten Messungen im Bereich des gepumpten Volumens nachträglich mit einem Profilometer [205] bestimmt.

Die Schichten wurden über den in der Abbildung 5.11 skizzierten Aufbau mit dem Microchiplasersystem (Abschnitt 5.3.1) bei einer Wiederholrate von $\nu = 50 \text{ Hz}$ und einer Energie pro Puls von $E_p = 0,8 \mu\text{J}$ optisch gepumpt.

Alle nahfeldmikroskopischen Untersuchungen wurden sowohl an laseraktiven Schichten als auch an reinen PMMA-Schichten (Lösung: 2 g PMMA mit MW=100000 g/mol und 7,5 ml CHCl_3) durchgeführt.

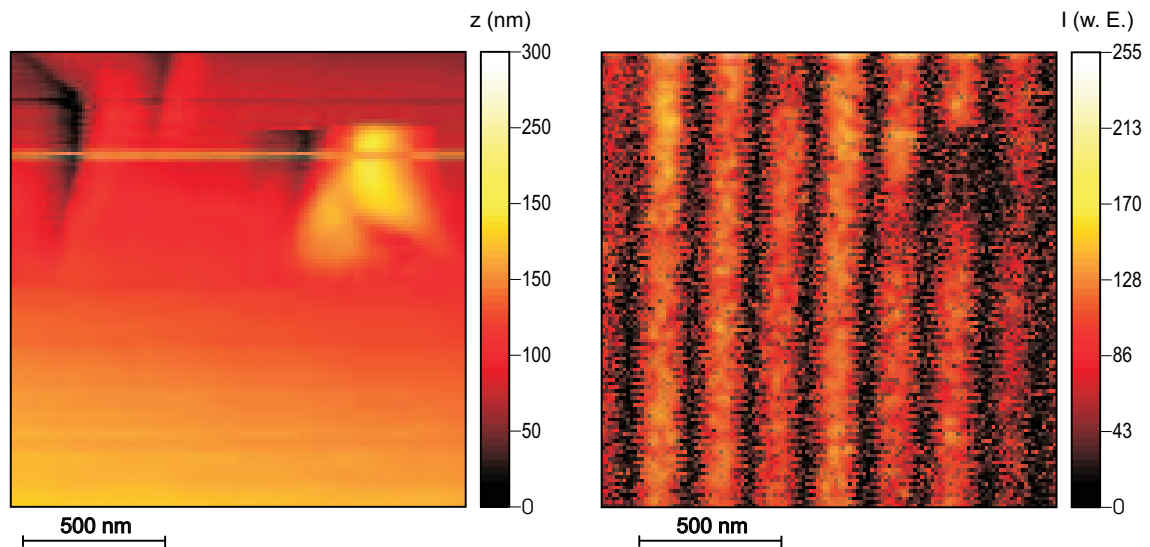


Abbildung 7.16: Nahfeldmikroskopische Aufnahme der Interferenzstruktur an einer PMMA-Schicht mit dem in Abbildung 5.12 dargestellten Aufbau: Die linke Abbildung zeigt das topographische Signal. Die rechte Abbildung zeigt das über einen Photomultiplier detektierte optische Signal: Es ist eine Interferenzstruktur zu erkennen, welche durch die lokale topographische Erhebung im oberen rechten Viertel des Bildes gestört wird.

Bei der Bestimmung des Kontrastverhältnisses V und der lokalen Eindringtiefe d_p sind die in den Abschnitten 2.8 und 3.4.2 diskutierten Artefakte durch zu starke topographische Änderungen in der Oberfläche zu vermeiden. Abbildung 7.16 zeigt den Einfluss einer lokalen topographischen Erhebung auf das Kontrastverhältnis.

Für die in Abbildung 7.16 detektierte Interferenzstruktur ergibt sich bei einem Einkoppel-

winkel $\alpha \approx 0^\circ$ ein Interferenzstreifenabstand von $\Lambda = (209 \pm 6)$ nm. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem theoretisch erwarteten Streifenabstand überein: Für den Einkoppelwinkel $\alpha = 0^\circ$ und den Brechungsindex $n = 1,7946$ des Prismas bei der Pumpwellenlänge $\lambda = 532$ nm ergibt sich nach Gleichung 5.2 ein Streifenabstand von $\Lambda = 209,62$ nm.

7.6.1 Messung des Kontrastverhältnisses

Zur Messung des Kontrastverhältnisses wurde zunächst der in Abbildung 5.12 dargestellte Aufbau derart justiert, dass sowohl ein DFB-Signal mit Hilfe des Monochromators als auch ein Interferenzmuster in einem Bereich niedriger Oberflächenrauigkeit der PMMA-Schicht mit Hilfe des optischen Nahfeldmikroskops detektiert wird. Danach wurde die y-Scanbewegung deaktiviert, wodurch nur in x-Richtung eine feste Zeile optisch und topographisch erfasst wird. Bei der folgenden Aufzeichnung der Daten bildet dann die y-Achse des Bildes die Zeitachse. Es wurde ein Interferenzstreifenabstand von $\Lambda = (209 \pm 4)$ nm gemessen.

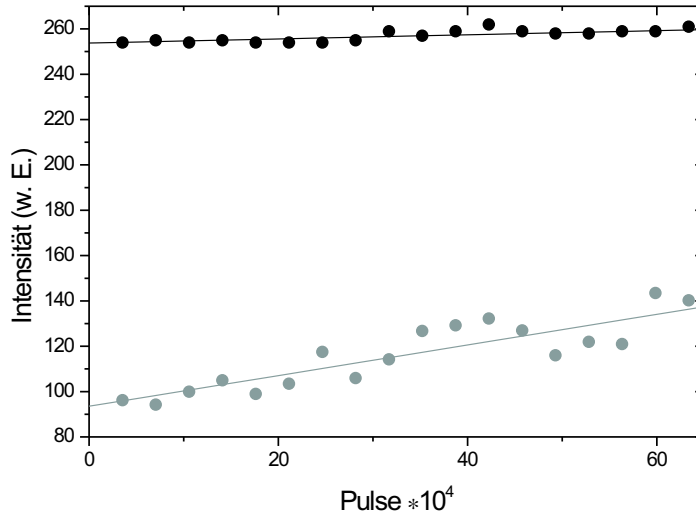


Abbildung 7.17: Bestimmung der Absolutwerte der Intensität in einem Minimum (graue Punkte) und dem benachbarten Maximum (schwarze Punkte) in Abhängigkeit von der Anzahl der eingestrahlten Pumppulse aus den zeitaufgelösten nahfeldmikroskopischen Messungen. Die durchgezogenen Linien repräsentieren die linearen Anpassungen. Für die lineare Anpassung der Maxima gilt $f(x) = (9,1 \cdot 10^{-6} \pm 1,6 \cdot 10^{-6}) \times x + (253,7 \pm 0,7)$ und für die lineare Anpassung der Minima gilt $f(x) = (6,8 \cdot 10^{-5} \pm 0,7 \cdot 10^{-5}) \times x + (93,5 \pm 3,3)$.

Abbildung 7.17 zeigt beispielhaft die Auswertung eines Minimum/Maximum-Paares zur Bestimmung des Kontrastverhältnisses $V = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min})$ (Gleichung 3.10)

in der farbstoffdotierten PMMA-Schicht. Im Bereich des Minimums steigt die Intensität während der Einstrahldauer um 46,8 % an, während sie im Bereich des Maximums lediglich um 2,4 % ansteigt.

Die Bestimmung des mittleren Kontrastverhältnisses erfolgt aus der gewichteten Mittelung von vier benachbarten Minima und Maxima und ist für die farbstoffdotierte Schicht in Abbildung 7.18 dargestellt.

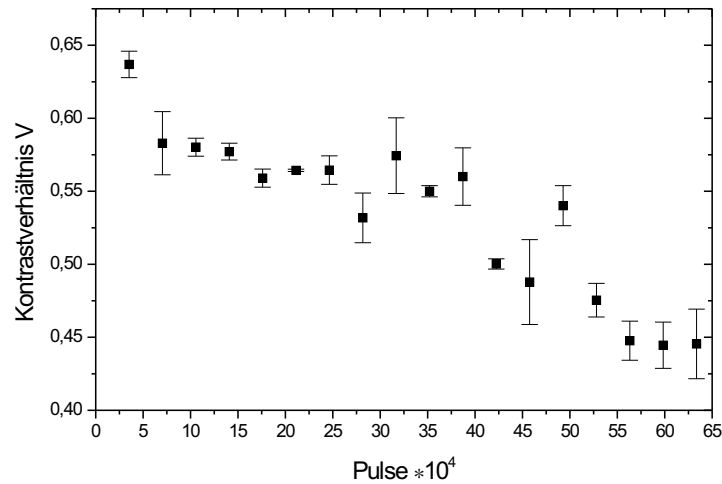


Abbildung 7.18: Abhängigkeit des gemessenen Kontrastverhältnisses von der Anzahl der eingestrahnten Pumppulse für die farbstoffdotierte PMMA-Schicht.

Während für die reine PMMA-Schicht keine signifikante Änderung des Kontrastverhältnisses detektiert wird, nimmt für die farbstoffdotierte PMMA-Schicht der gemessene Kontrast von $V \approx 0,64$ auf $V \approx 0,44$, d.h. um 29,7 %, ab.

Nachfolgende Messungen des Kontrastverhältnisses mit der verwendeten NSOM-Sonde an einem unbeschichteten und einem mit PMMA beschichteten Glasprisma ergaben eine laterale optische Auflösung von $\Delta x_{\text{opto}} < 100$ nm (siehe dazu auch Abschnitt 3.4.1). Aus diesem Auflösungsvermögen und dem gemessenen Kontrastverhältnis zu Beginn der Messung an der farbstoffdotierten Schicht von $V = 0,64$ lässt sich das induzierte Kontrastverhältnis abschätzen (Abbildung 7.19): Ein induziertes Kontrastverhältnis von $V = 0,93$ ergibt bei der Detektion mit der NSOM-Sonde mit einer lateralen optischen Auflösung von $\Delta x_{\text{opto}} < 100$ nm ein Kontrastverhältnis von $V = 0,64$.

Das in die farbstoffdotierte PMMA-Schicht induzierte Kontrastverhältnis $V = 0,93$ weicht von den Werten an unbeschichteten ($V \approx 0,99$) und mit PMMA beschichteten Glasprismen ($V \approx 0,98$) ab. Für diese Abweichung ist zum einen die vorangehende Justage des Systems verantwortlich: Vor Beginn der Messung des Kontrastverhältnisses wird die Schicht bereits optisch gepumpt und so die beobachtete Veränderung des Kontrastverhältnisses

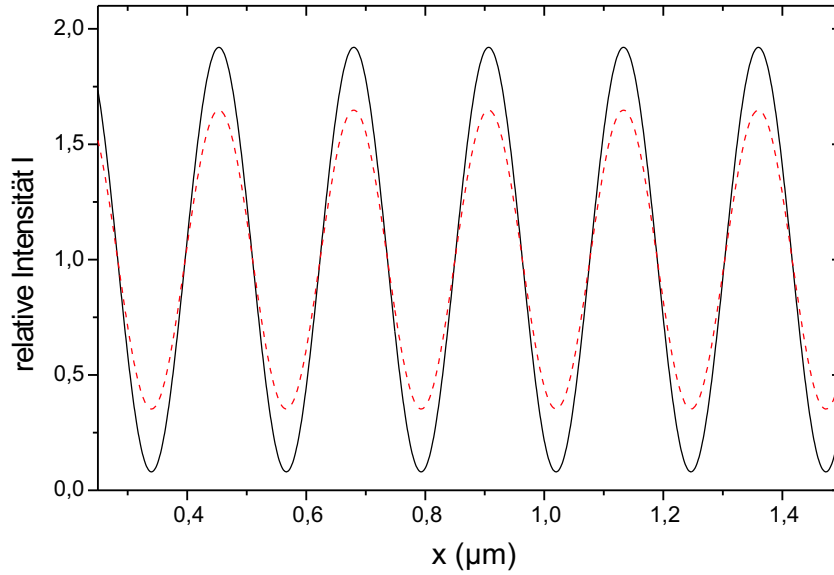


Abbildung 7.19: Aus einem induzierten Interferenzmuster (schwarze Linie) mit einem Kontrastverhältnis von $V = 0,93$ resultiert bei der Detektion mit einer NSOM-Sonde, welche eine laterale optische Auflösung von $\Delta x_{\text{opto}} < 100 \text{ nm}$ besitzt, das als gestrichelte Linie dargestellte Interferenzmuster mit dem Kontrastverhältnis $V = 0,64$.

(Abbildung 7.18) eingeleitet. Diese Abweichung ist aber auch auf die Fluoreszenz des Farbstoffes zurückzuführen: über die NSOM-Sonde wird die Wellenlänge des Pumplichtes $\lambda = 532 \text{ nm}$ unter Verwendung des Monochromators zwar spektral vom Fluoreszenzlicht separiert. Diese Separation ist aber nicht möglich für das Fluoreszenzlicht bei $\lambda = 532 \text{ nm}$, so dass ein Teil des Fluoreszenzlichtes zum Untergrundsignal und damit zu einer Verschlechterung des Kontrastes beiträgt (siehe dazu Abbildung 7.1).

Parallel zu den nahfeldmikroskopischen, zeitaufgelösten Aufnahmen der farbstoffdotierten Schicht wurde das spektrale Verhalten des DFB-Signals mit dem 0,5 m-Monochromator (Abschnitt 5.2.1) und mit der Streackkamera das zeitliche Verhalten der emittierten DFB-Pulse (Abschnitt 5.2.2) detektiert. Der experimentelle Aufbau ist in den Abbildungen 5.11 und 5.12 skizziert.

In Abbildung 7.20 ist das spektrale Verhalten des emittierten DFB-Signals bei einer Anzahl $N = 3,8 \cdot 10^5$ Pumpimpulsen dargestellt. Es wird ein Intensitätsmaximum bei einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{max}} = 622,59 \text{ nm}$ gemessen. Nach $N \approx 4 \cdot 10^5$ Pulsen wurde das Lasersignal instabil und nach $N \approx 5,5 \cdot 10^5$ Pulsen wurde keine Lasertätigkeit mehr detektiert (Abbildung 7.18). Eine zeitliche Änderung von λ_{max} konnte während der Emission von DFB-Pulsen nicht detektiert werden. Die gemessene Emissionswellenlänge stimmt gut mit dem gemessenen Interferenzstreifenabstand $\Lambda = (209 \pm 4) \text{ nm}$ und der nach Gleichung 4.6 resultierenden DFB-Emissionswellenlänge von $\lambda = (622,82 \pm 11,92) \text{ nm}$ überein.

Abbildung 7.21 zeigt das zeitliche Verhalten der emittierten DFB-Laserpulse in

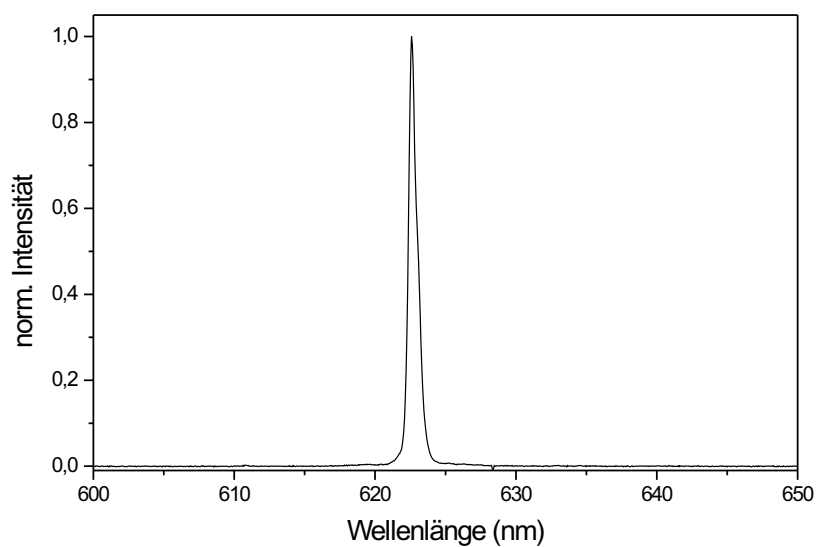


Abbildung 7.20: Spektrales Verhalten des emittierten DFB-Laserpulses nach $N = 3,8 \cdot 10^5$ Pumpimpulsen. Das Intensitätsmaximum liegt bei einer Wellenlänge von $\lambda_{\max} = 622,59 \text{ nm}$.

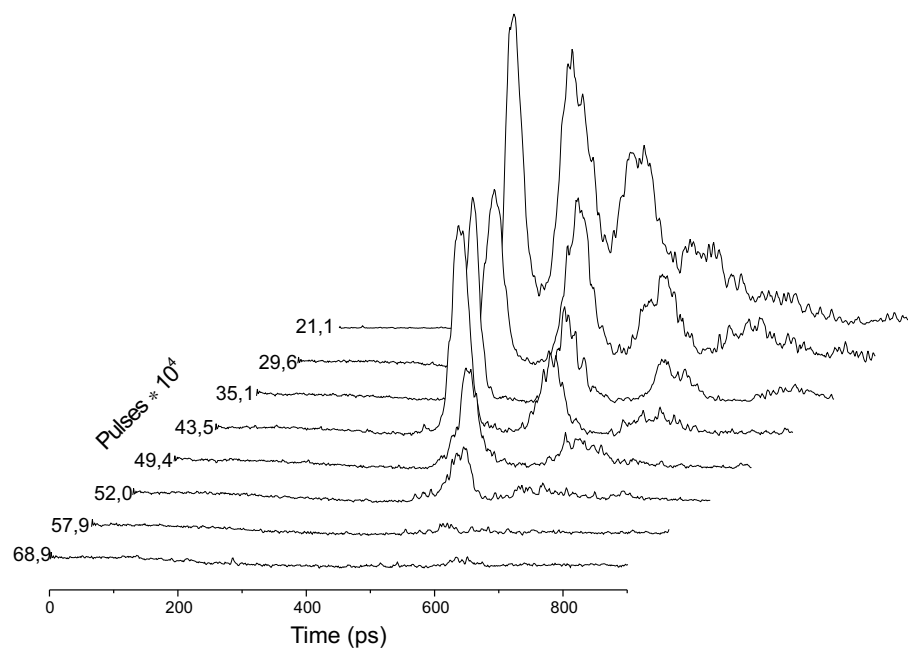


Abbildung 7.21: Zeitliches Verhalten der emittierten DFB-Laserpulse in Abhängigkeit von der Anzahl der eingestrahnten Pumpimpulse.

Abhängigkeit von der Anzahl der eingestrahnten Pumppulse. Zu Beginn der Messungen wurden Züge aus bis zu vier Pulsen emittiert. Die Anzahl der emittierten Pulse pro Pulszug nimmt mit steigender Anzahl von Pumppulsen ab. Bei mehr als $5,5 \cdot 10^5$ eingestrahnten Pumppulsen wird bei einer konstanten Pumppulsenergie kein DFB-Puls mehr detektiert. Für die mittlere Pulsdauer der jeweils ersten emittierten DFB-Pulse eines Pulszuges ergibt sich $\bar{\tau} = (25,8 \pm 3,0)$ ps. Dieser Wert liegt unterhalb des in Abschnitt 7.3 aufgezeigten Wertes für die Pulsdauer τ des ersten Pulses eines Pulszuges.

Für die numerischen Anpassungen des Ratengleichungsmodells (Abschnitt 4.2) an die gemessenen Pulse werden die in Tabelle 7.2 zusammengetragenen Werte und die jeweiligen gemessenen Kontrastverhältnisse (Abbildung 7.18 bzw. 7.23) verwendet. Die Teilchendichte N_0 wird als variabler Parameter gewählt.

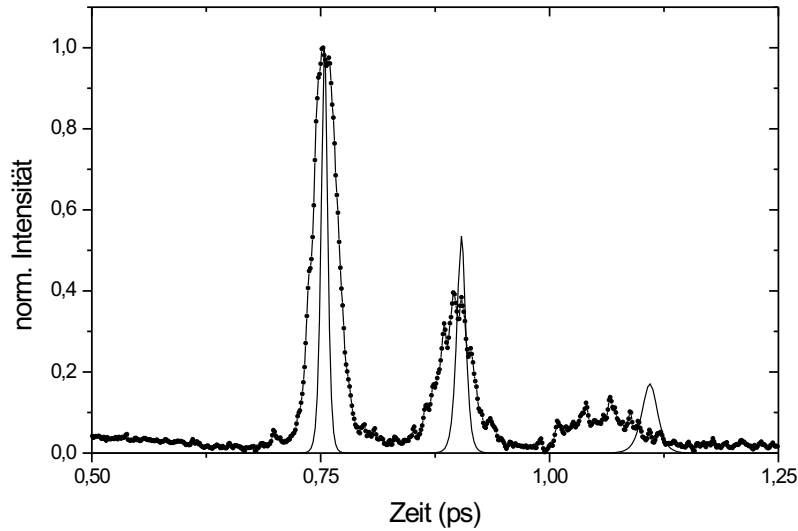


Abbildung 7.22: Zeitliches Verhalten der emittierten DFB-Laserpulse bei einer bereits eingestrahnten Pumpulszahl $N = 35,1 \cdot 10^4$ und deren numerische Anpassung nach dem Ratengleichungsmodell (schwarze Linie).

In Abbildung 7.22 ist der zeitliche Verlauf des emittierten Pulszuges bei einer Anzahl $N = 35,1 \cdot 10^4$ Pumppulsen und dessen numerische Anpassung nach dem Ratengleichungsmodell dargestellt. Als Kontrastverhältnis wird der aus den experimentellen Daten gewonnene Wert $V = 0,68$ verwendet. Die numerische Anpassung ergibt eine Teilchendichte $N_0 = 7 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$. Der numerisch berechnete Abstand des zweiten emittierten Pulses zum ersten emittierten Puls weicht von dem gemessenen Abstand um $\Delta t \approx 9$ ps ab. Der Abstand des dritten zum zweiten weicht um $\Delta t \approx 44$ ps ab. Diese Abweichungen konnten gegenüber vorherigen Simulationsrechnungen [169, 185] durch die Berücksichtigung der endlichen Schichtdicke reduziert werden (Abschnitt 4.2). Die numerische Simulation

liefert eine Pulsdauer des ersten Pulses von $\tau_{\text{simu}} = 7,2$ ps. Die gemessene Pulsdauer beträgt: $\tau_{\text{exp}} = 20,6$ ps. Diese Abweichung wurde bereits in früheren Messungen beobachtet [169,185] und ist derzeit ungeklärt. Simulationsergebnisse zeigen, dass die Wirkungsquerschnitte σ_a und σ_e (Tabelle 7.2) keinen signifikanten Einfluss auf die resultierenden Pulsdauern haben.

Die für die Simulation der übrigen gemessenen DFB-Pulse verwendeten Teilchendichten N_0 sind in Abbildung 7.23 zusammen mit dem jeweiligen aus den Messungen bestimmten Kontrastverhältnis V dargestellt. Es zeigt sich, dass sich die Teilchendichte bereits zu Beginn der Messung mit der Streakkamera aufgrund der vorangegangenen Justierarbeiten auf einen Wert von $N_0 = 8 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ reduziert hat.

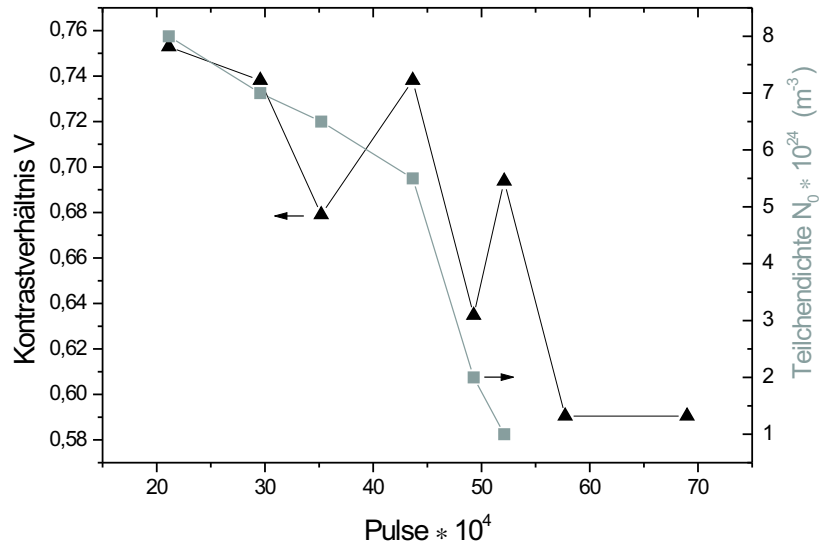


Abbildung 7.23: Die Abbildung zeigt die in der numerischen Simulation verwendeten Teilchendichten N_0 und die korrespondierenden gemessenen Kontrastverhältnisse (vgl. Abbildung 7.18).

Abbildung 7.24 zeigt die Simulation des zeitlichen Verhaltens der emittierten DFB-Laserpulse bei einer Variation des Kontrastverhältnisses V : eine Abnahme des Kontrastverhältnisses V bei fester Teilchendichte $N_0 = 4 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ ergibt auch bei $V = 0,2$ eine mögliche Laseremission.

Abbildung 7.25 zeigt die Simulation des zeitlichen Verhaltens der DFB-Laserpulse bei einer Variation der Teilchendichte N_0 : eine Abnahme der Teilchendichte N_0 bei einem festen Kontrastverhältnis $V = 0,55$ ergibt auch bei $N_0 = 1,5 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ eine mögliche Laseremission.

Die in den Abbildungen 7.24 und 7.25 dargestellten Simulationen deuten darauf hin, dass das in Abbildung 7.21 beobachtete zeitliche Verhalten auf eine gleichzeitige Abnahme des

Kontrastverhältnisses V und der Teilchendichte N_0 zurückzuführen ist, da jede Änderung für sich den experimentellen Befund nicht widerspiegelt.

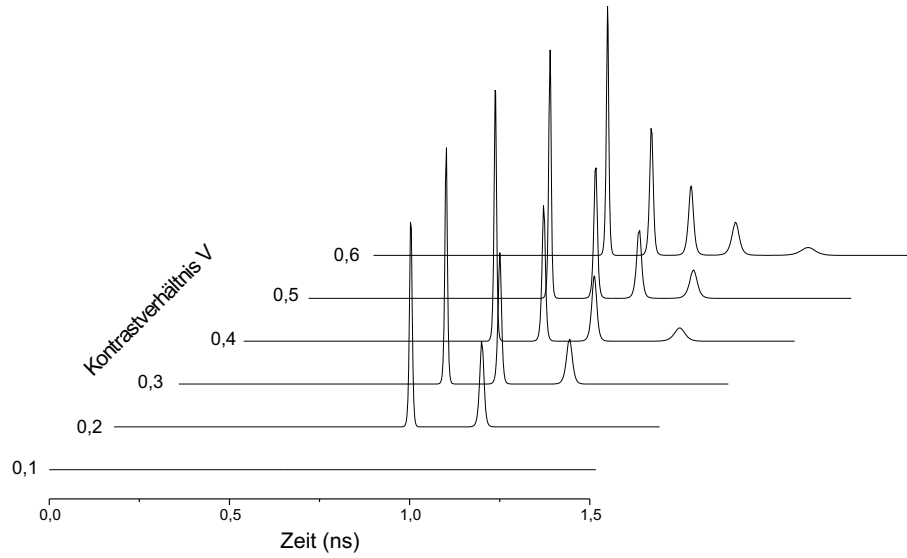


Abbildung 7.24: Simuliertes zeitliches Verhalten der emittierten DFB-Laserpulse bei einer Variation des Kontrastverhältnisses V und einer Teilchendichte $N_0 = 4 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$.

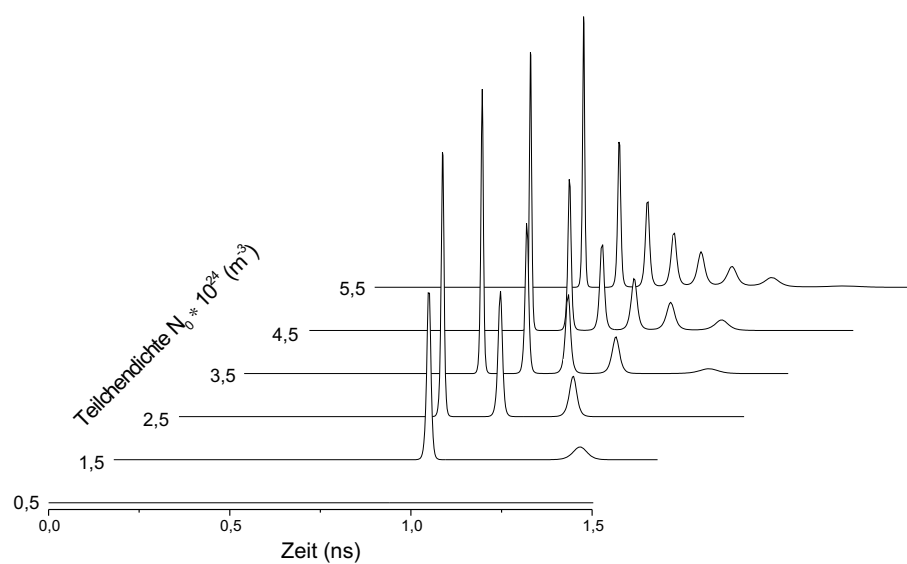


Abbildung 7.25: Simuliertes zeitliches Verhalten der emittierten DFB-Laserpulse bei einer Variation der Teilchendichte N_0 und einem Kontrastverhältnis $V = 0,55$.

7.6.2 Messung der Eindringtiefe

Zur Bestimmung der Eindringtiefe d_p des evaneszenten Feldes wurde das System an einer neuen Schicht der Dicke $d = (5,05 \pm 0,01) \mu\text{m}$ justiert und zur Bestimmung des Interferenzstreifenabstandes Λ einige Zeilen des topographischen und optischen Bildes mit dem optischen Nahfeldmikroskop aufgezeichnet. Es ergab sich ein Streifenabstand von $\Lambda = 209 \text{ nm}$. Danach wurden in definierten Abständen Δx senkrecht zum Interferenzmuster Wegziehscans, wie bereits in Abschnitt 3.4.2 erläutert, aufgenommen².

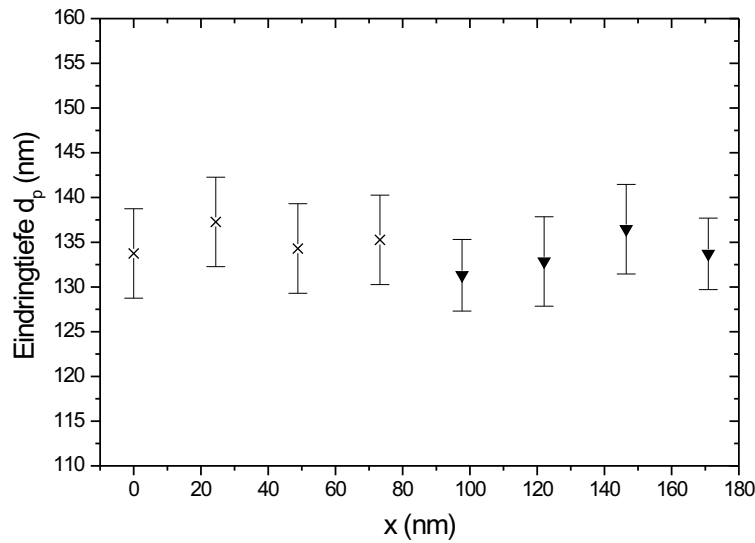


Abbildung 7.26: Bestimmung der Eindringtiefe d_p im Intensitätsminimum (Kreuze) und -maximum (Dreiecke) an der PMMA-Schicht.

Abbildung 7.26 zeigt Ergebnisse einer derartigen Messung für eine reine PMMA-Schicht. Es ist kein signifikanter Unterschied der im Intensitätsminimum und Intensitätsmaximum gemessenen Eindringtiefen d_p zu erkennen. Das Zentrum des Minimums befindet sich bei $x \approx 35 \text{ nm}$, das des Interferenzmaximums bei $x \approx 135 \text{ nm}$.

Abbildung 7.27 zeigt die Ergebnisse einer derartigen Messung für eine farbstoffdotierte PMMA-Schicht, welche oberhalb der DFB-Laserschwelle gepumpt wird. Es ist ein lokaler Unterschied der gemessenen Eindringtiefen zu erkennen. Nach ca. 500000 Pumpimpulsen erlischt das DFB-Lasersignal und die Messung wird nach weiteren 100000 Pumpimpulsen an den gleichen Positionen bei gleichen Bedingungen wiederholt. Die dann gemessenen Eindringtiefen sind in Abbildung 7.28 dargestellt.

Während der in den Abbildungen 7.27 und 7.28 dargestellten Messungen wird die Schicht

²Es sei an dieser Stelle nochmals darauf hingewiesen, dass folgende Messungen des evaneszenten Feldes die Intensität nach Gleichung 3.51 detektieren (Abschnitt 3.3.1).

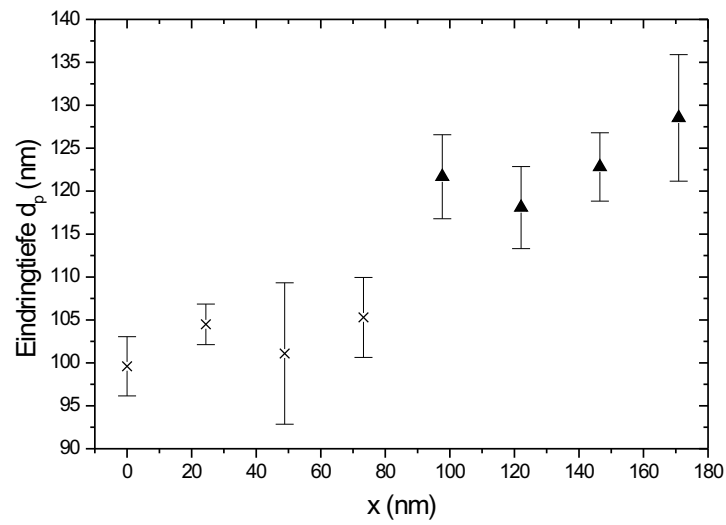


Abbildung 7.27: Bestimmung der Eindringtiefe d_p während des Laserbetriebs im Intensitätsminimum (Kreuze) und -maximum (Dreiecke) an der farbstoffdotierten PMMA-Schicht im DFB-Laserbetrieb.

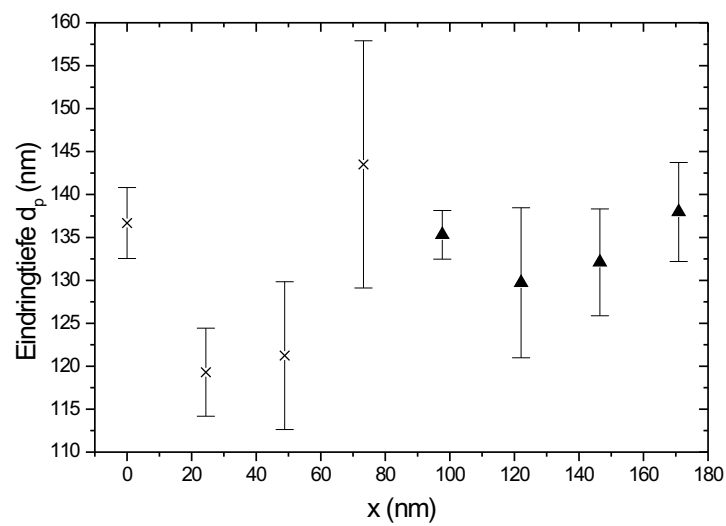


Abbildung 7.28: Bestimmung der Eindringtiefe d_p nach Beendigung des Laserbetriebs im Intensitätsminimum (Kreuze) und -maximum (Dreiecke) an einer farbstoffdotierten PMMA-Schicht.

kontinuierlich optisch gepumpt. Um den zeitlichen Einfluss des Pumplichtes auf die Eindringtiefe zu extrahieren, wird die Eindringtiefe d_p auf einem Intensitätsmaximum in Abhängigkeit von der Anzahl der eingestrahnten Pumppulse detektiert. Diese Messung erfolgt für die farbstoffdotierte Schicht in einem unverbrauchten Bereich der zuvor untersuchten Schicht. Während der notwendigen Justage und Positionierung der NSOM-Sonde wurde eine übereinstimmende Pumpgeometrie angestrebt. In Abbildung 7.29 ist deutlich die lokale Änderung der Eindringtiefe d_p im Intensitätsmaximum in Abhängigkeit von der Anzahl der Pumppulse zu erkennen. Aufgrund der notwendigen Justage und damit der leicht unterschiedlichen Geometrie und einer abweichenden Anzahl von Pumpspulen, die vor Beginn der Messungen mit den Farbstoffmolekülen wechselgewirkt haben, sind die Absolutwerte der gemessenen Eindringtiefen nicht mit Absolutwerten der Eindringtiefen in den Abbildungen 7.27 und 7.28 vergleichbar.

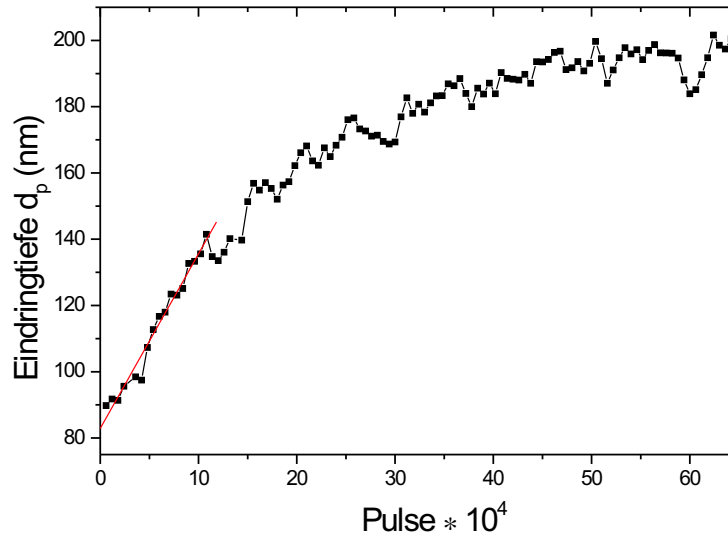


Abbildung 7.29: Bestimmung der Eindringtiefe d_p im Interferenzmaximum in Abhängigkeit von der Anzahl der eingestrahnten Pumppulse für die farbstoffdotierte PMMA-Schicht. Die rote Linie stellt die lineare Anpassung der Daten von $n = 0$ bis $12 \cdot 10^4$ Pulse dar.

Die Aufzeichnung der Messdaten, aus denen jeweils genau ein Datenpunkt und der dazugehörige Fehlerbalken in den Abbildungen 7.27 und 7.28 extrahiert wird, nimmt die Zeit $t = 60$ s in Anspruch. Bei einer Wiederholrate des Pumpsystems von $\nu = 50$ Hz entspricht dies $N = 3000$ Pulsen. In diesem Bereich kann die zeitliche Entwicklung der Eindringtiefe mit hinreichender Genauigkeit durch eine lineare Anpassung beschrieben werden. Da die Messungen an unterschiedlichen Positionen x zeitlich nacheinander erfolgen müssen, ist eine Korrektur der Daten mit der in Abbildung 7.29 dargestellten linearen Anpassung $d_p(\text{Pulse}) = (82,88 + 5,27 \cdot 10^{-4} \cdot \text{Pulse})$ nm notwendig. Es ergibt sich für $N = 3000$ Pul-

se eine Änderung der Eindringtiefe von $\Delta d_{p,\max} = 1,58$ nm zwischen den Messpunkten im Intensitätsmaximum. Aus dem berechneten Kontrastverhältnis $V = 0,95$ ergibt sich $I_{\min} = 0,03 \cdot I_{\max}$ (Gleichung 3.10). Es wird angenommen, dass das zeitliche Verhalten der Eindringtiefe in Abhängigkeit von der eingestrahnten Pumpenergie auch im Minimum während der Lasertätigkeit linear ist, so dass hieraus eine Änderung der Eindringtiefe im Minimum von $\Delta d_{p,\min} = 0,03 \cdot \Delta d_{p,\max} = 0,05$ nm abgeschätzt werden kann.

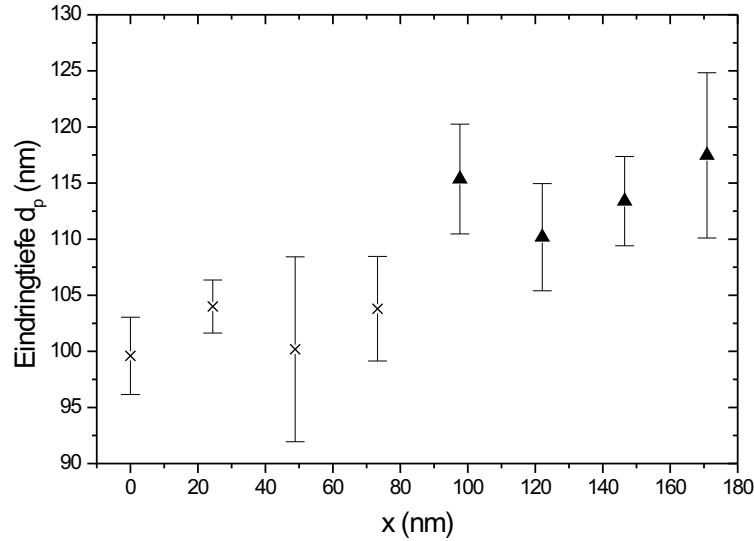


Abbildung 7.30: Bestimmung der Eindringtiefe d_p während des Laserbetriebs im Intensitätsminimum (schwarz) und -maximum (rot) unter Berücksichtigung der Modifikation der farbstoffdotierten Schicht.

Abbildung 7.30 zeigt die gleichen Daten wie in Abbildung 7.27 allerdings mit der Korrektur der zeitabhängigen Modifikation der Schicht: Im Bereich des Intensitätsminimums wurden sie mit $\Delta d_{p,\min}$ und im Bereich des Intensitätsmaximums mit $\Delta d_{p,\max}$ korrigiert. Es ergibt sich im Bereich des Minimums (schwarze Dreiecke) ein gewogener Mittelwert von $d_{p,\min} = (102,65 \pm 1,76)$ nm und im Bereich des Maximums (rote Dreiecke) ein gewogener Mittelwert von $d_{p,\max} = (113,47 \pm 2,45)$ nm. Daraus ergibt sich ein lokaler Unterschied in der Eindringtiefe von $\Delta d_p = d_{p,\max} - d_{p,\min} = (10,8 \pm 3,0)$ nm.

Abschließend wurde die Schichtdicke d im Bereich des gepumpten Volumens zu $d = (5,05 \pm 0,01)$ μm bestimmt. Diese Schichtdicke stimmt mit der zuvor im Randbereich der Beschichtung gemessenen Dicke überein (siehe oben).

Für die undotierte PMMA-Schicht zeigt sich auch für eine hohe Anzahl eingestrahelter Pumpimpulse für die PMMA-Schicht keine detektierbare Änderung der Eindringtiefe d_p (Abbildung 7.31).

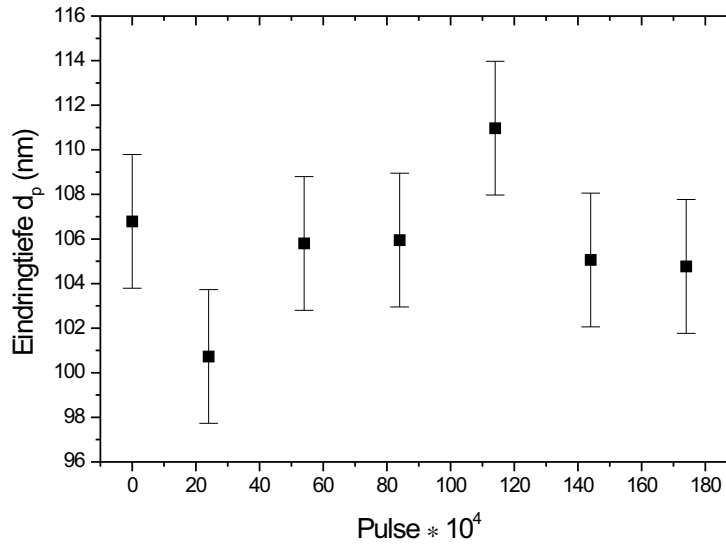


Abbildung 7.31: Bestimmung der Eindringtiefe d_p im Interferenzmaximum in Abhängigkeit von der Anzahl der eingestrahnten Pumppulse für eine undotierte PMMA-Schicht.

Allen hier dargestellten Messungen folgte eine weitere topographische Aufnahme der untersuchten Oberfläche mit dem Nahfeldmikroskop, um eine topographische Modifikation der Oberfläche und/oder der Faserspitze und deren Einfluss auf die gewonnenen Messergebnisse auszuschließen. Eine topographische Modifikation durch das Pumplicht konnte dabei ebenfalls nicht festgestellt werden.

7.7 Diskussion

Das Erlöschen des Lasersignals wird auf eine Abnahme der Teilchendichte N_0 der Farbstoffmoleküle im gepumpten Bereich und eine Abnahme des Kontrastverhältnisses V zurückgeführt (Abschnitt 7.6.1).

Eine homogene Änderung des Brechungsindex n der Rhodamin 6G-dotierten PMMA-Schicht kann nicht detektiert werden: so zeigte sich keine Änderung der DFB-Laserwellenlänge λ und keine Änderung des Streifenabstandes Λ in Abhängigkeit von der Anzahl N der eingestrahnten Pumppulse (Abschnitt 7.6.1). Hierbei ist zu beachten, dass sich der Brechungsindex n aus fehlerbehafteten Größen berechnet: die DFB-Wellenlänge kann nur mit einer Genauigkeit des Monochromators $\Delta\lambda = 0,02$ nm (Abschnitt 5.2.1) bestimmt werden. Der Streifenabstand Λ besitzt einen Fehler von $\Delta\Lambda = 4$ nm. Nach Gleichung 4.6 ergibt sich unter Verwendung des Gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetzes für

den Brechungsindex ein Fehler von $\Delta n = 5,7 \cdot 10^{-2}$.

Die in Abschnitt 7.6.1 dargestellte gemessene zeitliche Abnahme des Kontrastverhältnisses deutet auf die Ausbildung eines permanenten Brechungsindexgitters hin: das Kontrastverhältnis nimmt aufgrund von Selbstbeugungseffekten (Abschnitt 3.2.2.2) an dieser permanent induzierten Modulation des Brechungsindex ab. Zu Beginn der Einstrahlung kommt es aufgrund des schnelleren Ausbleichens im Bereich des Intensitätsmaximums zu einer Abnahme des mittleren Kontrastverhältnisses von $V \approx 0,64$ auf $V \approx 0,56$. Dabei ist die gemessene Intensitätszunahme im Bereich der Intensitätsminima maßgeblich für die Abnahme des Kontrastverhältnisses verantwortlich. Diese Zunahme der Intensität deutet auf eine lokale Abnahme des Brechungsindex im Bereich der Interferenzmaxima hin und ist auf die Bildung eines Konzentrationsgitters aufgrund des Aufbleichens des Farbstoffes zurückzuführen.

Es konnte eine lokale Änderung der Eindringtiefe d_p während des Laserbetriebs für farbstoffdotierte PMMA-Schichten detektiert werden (Abschnitt 7.6.2), welche nach Erlöschen des Lasers nicht mehr detektiert wird. Die Eindringtiefe d_p ist abhängig vom Übergang zwischen Prismenmaterial und PMMA (Gleichung 3.50, Abschnitt 3.3.1) und vom lokalen Brechungsindex n an der Stelle der Totalreflexion. Die lokale Änderung der Eindringtiefe d_p während des Laserbetriebs der Schicht deutet auf eine lokale transiente inhomogene Änderung des Brechungsindex n hin. Diese Annahme wird durch das in Abschnitt 7.2 aufgezeigte spektrale Verhalten des Emissionssignals bekräftigt.

Im Folgenden wird die induzierte Brechungsindexmodulation anhand von bekannten Wirkungsquerschnitten von Rhodamin 6G in Ethanol abgeschätzt (Abschnitt 7.7.1). Die lokale Änderung der Eindringtiefe und ihre Detektion mit der optischen Apertur wird in einem mathematischen Modell simuliert (Abschnitt 7.7.2).

7.7.1 Vergleich mit theoretischem Modell

Die Teilchendichte der verwendeten Schichten beträgt (Abschnitt 7.1):

$$N_0 = 8,87 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3} . \quad (7.5)$$

Für den Absorptionsquerschnitt σ_p folgt aus experimentellen Daten (Tabelle 7.2):

$$\sigma_p(\lambda = 532 \text{ nm}) = 2,37 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2 . \quad (7.6)$$

Dann folgt für den Absorptionskoeffizienten α der Schicht nach Gleichung 4.15 bzw. Abschnitt 7.1:

$$\alpha(\lambda = 532 \text{ nm}) = \sigma_p N = 2,10 \cdot 10^5 \text{ m}^{-1} . \quad (7.7)$$

Da das optische Signal mit dem Nahfeldmikroskop während des Laserbetriebs der Schicht aufgenommen wird, liegt im zeitlichen Mittel eine Besetzungsinversion innerhalb der

Schicht vor, welche durch die Emission von DFB-Pulsen abgebaut wird. Wird das System unterhalb der Laserschwelle optisch gepumpt, kann keine Besetzungsinversion aufgebaut werden und die Dichte der Teilchen im angeregten Zustand N_1 berechnet sich nach Gleichung 3.20 (Abschnitt 3.2.1).

Für den Fall der Besetzungsinversion ist die Dichte der Teilchen im angeregten Zustand N_1 :

$$N_1 > 1/2 \cdot N_0 = 1/2 \cdot 8,87 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3} . \quad (7.8)$$

Für den Fall der Besetzungsinversion wird N_1 im Folgenden mit $N_1 \approx 6 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ abgeschätzt.

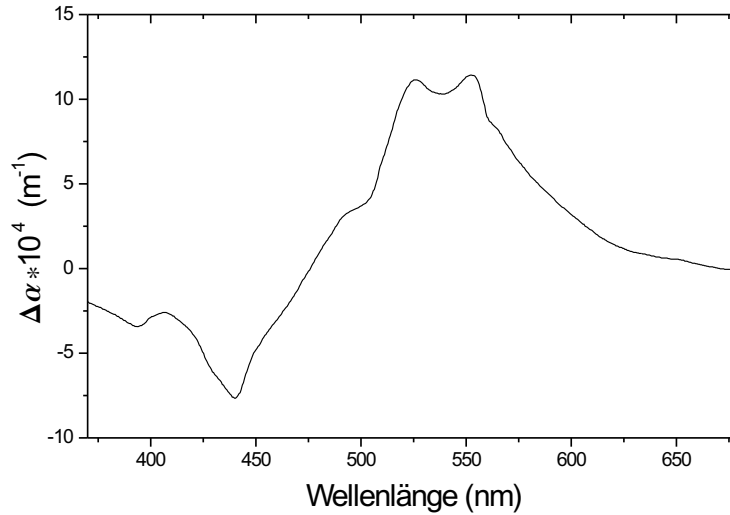


Abbildung 7.32: Änderung des Absorptionskoeffizienten α für $N_1 = 6 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ Teilchen im angeregten Zustand nach Gleichung 4.1 und den Daten aus Abbildung 4.4 (nach [135]).

Da in der verfügbaren Literatur keine Werte für den Absorptionsquerschnitt des untersten Singulett-Zustandes bei der Pumpwellenlänge σ_p und den Wirkungsquerschnitt des ersten angeregten Singulett-Zustandes für die induzierte Emission σ_p für Rhodamin 6G in PMMA zur Verfügung stehen, wird die induzierte Änderung des Absorptionskoeffizienten α und des Brechungsindex n mit den in Abschnitt 4.1 vorgestellten Datensätzen für Rhodamin 6G in Ethanol abgeschätzt (Abbildungen 4.3 und 4.4).

Mit den in Abbildung 4.4 dargestellten Wirkungsquerschnitten von D. Magde et al. [172] für Rhodamin 6G in Ethanol ergibt sich aus der Kramers-Krönig-Relation nach Gleichung 3.21 und den Berechnungen von D. Langhans et al. [135] die in den Abbildungen 7.32

und 7.33 dargestellte Wellenlängenabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten α bzw. des Brechungsindex n .

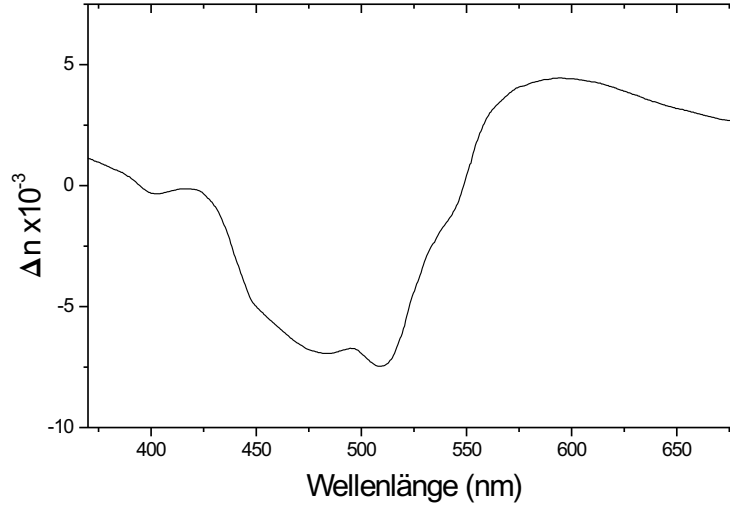


Abbildung 7.33: Änderung des Brechungsindex n für $N_1 = 6 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ Teilchen im angeregten Zustand nach Gleichung 3.21 und den Daten aus Abbildung 7.32 (nach [135]).

Es ergibt sich eine Änderung des Absorptionskoeffizienten α bei einer Pumpwellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ von $\Delta\alpha \approx 1 \cdot 10^5 \text{ m}^{-1}$ (Abbildung 7.32). Daraus resultiert nach der Kramers-Krönig-Relation (Gleichung 3.21) eine Änderung des Brechungsindex n von $\Delta n \approx -2,6 \cdot 10^{-3}$.

Für die in Abbildung 4.3 dargestellten Wirkungsquerschnitte von O. Teschke et. al. [171] folgt nach den gleichen Überlegungen eine Änderung des Absorptionskoeffizienten α bei der Pumpwellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ von $\Delta\alpha \approx 1,5 \cdot 10^3 \text{ m}^{-1}$ (Abbildung 7.34) und eine Änderung des Brechungsindex von $\Delta n \approx -4,2 \cdot 10^{-3}$ (Abbildung 7.35).

Während der in den Abbildungen 4.3 und 4.4 dargestellte Absorptionsquerschnitt des untersten Singulett-Zustandes bei der Pumpwellenlänge σ_p und der Wirkungsquerschnitt des ersten angeregten Singulett-Zustandes für die induzierte Emission σ_e sich jeweils in ihrem Verlauf und ihrer Größe ähneln, unterscheiden sich die jeweils gemessenen Wirkungsquerschnitte σ_a für die Reabsorption der Laserstrahlung. Dieser Unterschied ist maßgeblich für das Verhalten der Änderung des Absorptionskoeffizienten α und des Brechungsindex n verantwortlich, wie aus den extrahierten Daten bei der Pumpwellenlänge deutlich wird. Ein Datensatz für Rhodamin 6G in PMMA steht derzeit für eine Berechnung der Brechungsindexänderung Δn nicht zur Verfügung, so dass zur Zeit nur eine Abschätzung mit Wirkungsquerschnitten für Rhodamin 6G in Ethanol möglich ist. Es ist anzunehmen, dass eine lokale Änderung des Brechungsindex auf das Verhalten der Wirkungsquerschnitte

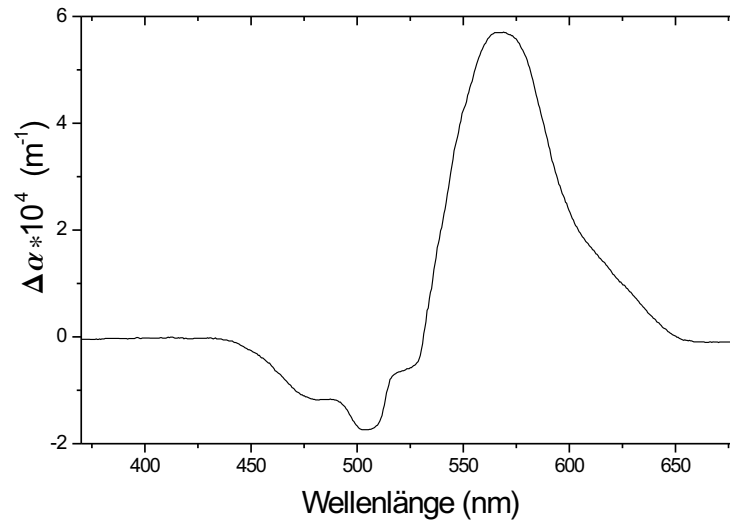


Abbildung 7.34: Änderung des Absorptionskoeffizienten α für $N_1 = 6 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ Teilchen im angeregten Zustand nach Gleichung 4.1 und den Daten aus Abbildung 4.3 (nach [135]).

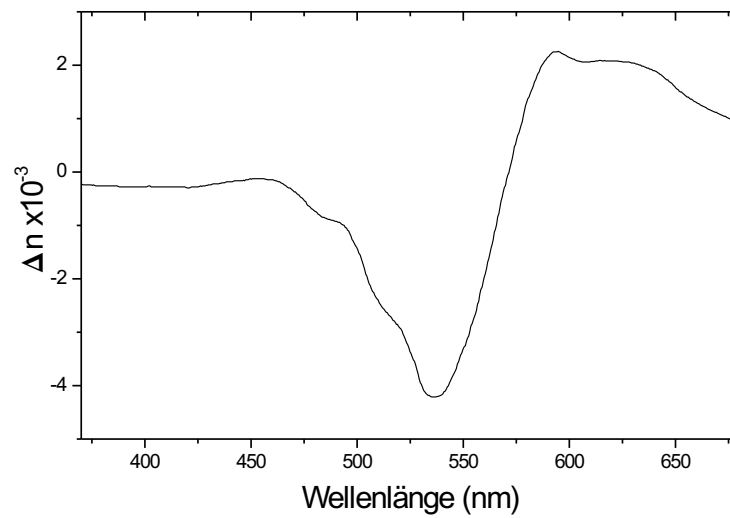


Abbildung 7.35: Änderung des Brechungsindex n für $N_1 = 6 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ Teilchen im angeregten Zustand nach Gleichung 3.21 und den digitalisierten Daten aus Abbildung 7.34 (nach [135]).

im Festkörper zurückzuführen ist. Eine Bestimmung dieser Wirkungsquerschnitte für Rhodamin 6G in PMMA wird durch das Ausbleichen des Farbstoffes erschwert: Erst im Mai 2003 wurde ein Verfahren vorgestellt, welches die Bestimmung der Wirkungsquerschnitte von Laserfarbstoffen in Festkörperschichten ermöglicht [173]. Eine Anwendung dieses Verfahrens dürfte zukünftig die Berechnung der transienten induzierten Brechungsindexmodulation in den hier untersuchten farbstoffdotierten PMMA-Schichten ermöglichen.

7.7.2 Mathematische Modellierung

Das lokal unterschiedliche Verhalten der Eindringtiefen im Laserbetrieb und nach Erlöschen des Lasers deutet auf eine transiente lokale Modifikation des Brechungsindex der farbstoffdotierten Schicht hin, welche im Folgenden im Rahmen eines diskreten Schichtmodells diskutiert wird.

In Abschnitt 3.4.2 wurde bereits der starke Einfluss des Einkoppelwinkels θ auf die Eindringtiefe d_p (Gleichung 3.50, Abschnitt 3.3.1) erläutert, daher wird dieser Winkel in die Betrachtung mit einbezogen.

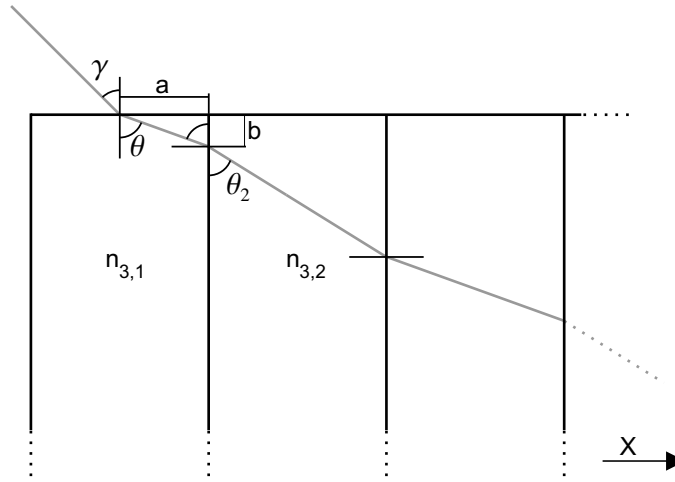


Abbildung 7.36: Die farbstoffdotierte Schicht wird durch eine periodische, diskrete Modulation des Brechungsindex senkrecht zur Schicht modelliert.

Es wird eine transiente periodische Modulation des Brechungsindex senkrecht zur Grenzfläche zum Prisma innerhalb der farbstoffdotierten Schicht der Dicke d angenommen (Abbildung 7.36). Zur Veranschaulichung des Strahlenganges und der Bezeichnungen sei an dieser Stelle auf Abbildung 5.1 verwiesen. Für den ortsabhängigen Brechungsindex $n(x)$ des Mediums 3 gelte nach Wahl eines geeigneten Koordinatenursprungs³:

$$n(x) = \begin{cases} n_{3,1} & \text{für } \left[\frac{x}{l}\right] \text{ gerade} \\ n_{3,2} & \text{für } \left[\frac{x}{l}\right] \text{ ungerade} \end{cases} .$$

Dabei bezeichnet l die halbe Periode des Streifenmusters. γ sei der Auftreffwinkel aus dem Medium mit dem Brechungsindex n_2 . Für den Winkel θ gilt dann:

$$n_2 \sin \gamma = n(x_0) \sin \theta \quad . \quad (7.9)$$

x_0 ist der Ort des Auftreffens des Strahls auf der Grenzfläche $n_2 \rightarrow n(x)$. Für den Abstand

³In folgendem Formalismus bezeichnet $[x]$ den Integerwert des Arguments x , z.B. $[0,9] = 0$, $[1,9] = 1$.

a vom Auftreffpunkt x_0 bis zur nächsten Grenzfläche gilt:

$$a = \left(1 - \frac{x_0}{l} - \left\lceil \frac{x_0}{l} \right\rceil\right) l . \quad (7.10)$$

Mit dem berechneten Winkel θ ergibt sich dann die Tiefe b , die in der Schicht, in welcher der Strahl auftrifft, zurückgelegt wird:

$$b = \frac{a}{\tan \theta} . \quad (7.11)$$

Für $b > d$ ist θ der gesuchte Winkel. Ansonsten wird der Winkel bestimmt, unter dem sich der Strahl in der angrenzenden Schicht ausbreitet:

$$n(x_0) \cos \theta = n(x_0 + a) \cos \theta_2 . \quad (7.12)$$

Diese Betrachtung wird fortgesetzt, bis der Strahl die Grenzfläche $n(x) \rightarrow n_0$ erreicht. An dieser Stelle wird der lokale Brechungsindex $n(x)$ und der Auftreffwinkel $\theta(x)$ zur Berechnung der Eindringtiefe d_p herangezogen.

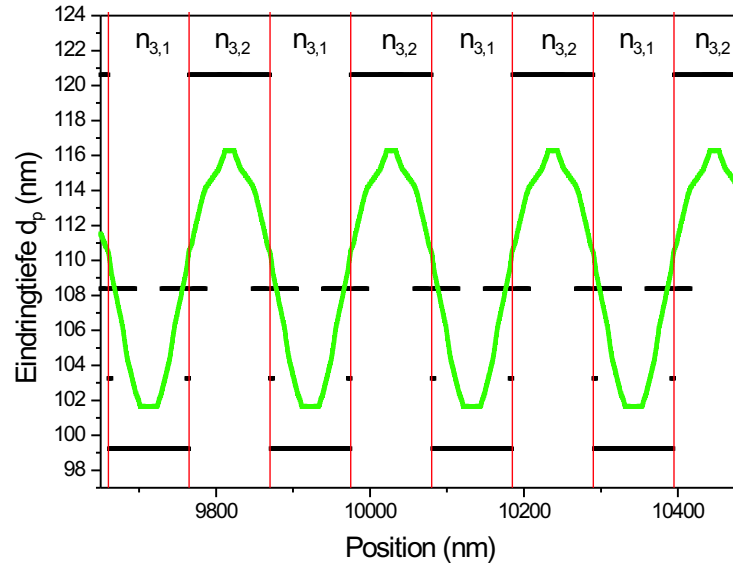


Abbildung 7.37: Simulationsergebnis für eine Schicht der Dicke $d = 5,18 \mu\text{m}$ und einer Brechungsindexmodulation von $\Delta n = n_{3,1} - n_{3,2} = 4 \cdot 10^{-2}$. Weitere Erläuterung zu dieser Abbildungen befinden sich in diesem Abschnitt.

Analog werden die Strahlen, welche an der Prismenrückseite reflektiert werden (vgl. Abbildung 5.1), ausgewertet. Dadurch ergibt sich eine lokale Abhängigkeit der Eindringtiefe des evanszenten Feldes $d_p(n_{3,1}, n_{3,2}, d, \gamma, a, l)$, welche von den Brechungsindizes $n_{3,1}$ und $n_{3,2}$, der Schichtdicke d , dem Winkel γ , der Auftreffposition des einfallenden Strahls a und der Gitterperiode $2l = \Lambda$ abhängt.

Die Faserspitze detektiert die lokale Eindringtiefe des evaneszenten Feldes an der Grenzfläche $n(x) \rightarrow n_0$, welche aus der Überlagerung aller beteiligten Strahlen entsteht. Für die folgenden Simulationen wird ein Interferenzstreifenabstand von $\Lambda = 209$ nm verwendet (vgl. Messungen in Abschnitt 7.6.2).

Die Abbildung 7.37 zeigt ein Simulationsergebnis am Beispiel einer Schicht der Dicke $d = 5,18$ μm und einer Brechungsindexmodulation von $\Delta n = n_{3,1} - n_{3,2} = 4 \cdot 10^{-2}$. Die roten Linien zeigen die diskreten Grenzschichten zwischen den Medien mit den Brechungsindices $n_{3,1}$ und $n_{3,2}$ auf. Die schwarzen Punkte stellen die berechneten lokalen Eindringtiefen dar. Die optische Auflösung des Nahfeldmikroskops wird über das detektierte Kontrastverhältnis bestimmt und beträgt $\Delta x_{\text{opto}} < 100$ nm (Abschnitt 3.4.1 und Abschnitt 7.6.1) und wird durch die Bildung eines gleitenden Durchschnitts über einen Bereich von 100 nm simuliert (vgl. Abbildung 3.13). Die grüne Linie stellt diesen gleitenden Durchschnitt über die lokalen Eindringtiefen (schwarze Punkte) dar. Die durch den gleitenden Durchschnitt berechnete Eindringtiefe kann mit der gemessenen Eindringtiefe d_p verglichen werden. Die Simulation (Abbildung 7.37) zeigt, dass die Eindringtiefen beim Austreten aus der farbstoffdotierten Schicht im Bereich des Brechungsindex $n_{3,1}$, d.h. im Bereich des Interferenzminimums, kleiner sind als im Bereich mit Brechungsindex $n_{3,2}$, d.h. im Bereich des Interferenzmaximums. Der maximale Unterschied in der Eindringtiefe beträgt $\Delta d_p = 14,7$ nm.

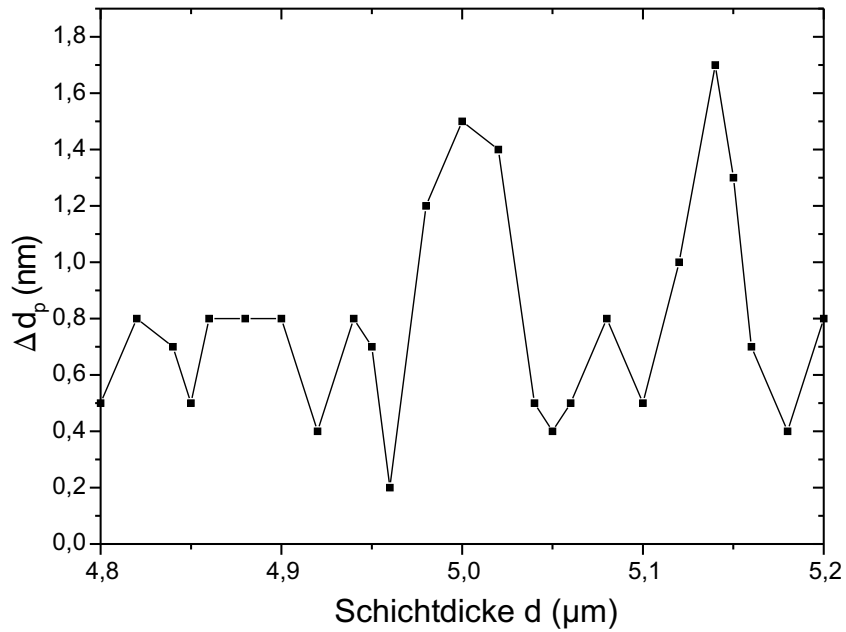


Abbildung 7.38: Abhängigkeit der maximalen Differenz in der Eindringtiefe Δd_p von der Dicke d der farbstoffdotierten Schicht bei einer Brechungsindexmodulation von $\Delta n = n_{3,1} - n_{3,2} = 5 \cdot 10^{-3}$.

Die Abbildungen 7.38 und 7.39 zeigen Δd_p in Abhängigkeit der Dicke d der farbstoff-

dotierten Schicht bei einer Brechungsindexmodulation von $\Delta n = n_{3,1} - n_{3,2} = 5 \cdot 10^{-3}$ bzw. $\Delta n = 4 \cdot 10^{-2}$.

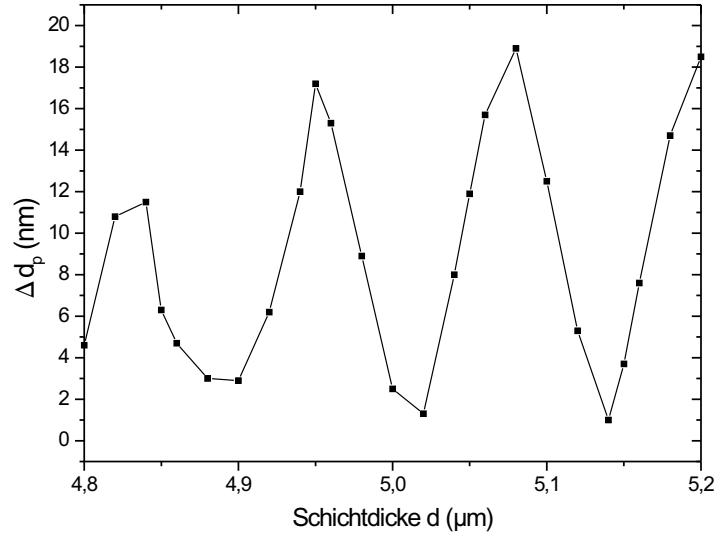


Abbildung 7.39: Abhängigkeit der maximalen Differenz in der Eindringtiefe Δd_p von der Dicke d der farbstoffdotierten Schicht bei einer Brechungsindexmodulation von $\Delta n = n_{3,1} - n_{3,2} = 4 \cdot 10^{-2}$.

Die Schichtdicke d der untersuchten Schicht betrug $d = (5,05 \pm 0,01) \mu\text{m}$ (Abschnitt 7.6.2). Für diese Schichtdicke wurde das Verhalten des maximalen Unterschiedes in der Eindringtiefe Δd_p simuliert (Abbildung 7.40).

Der in Abschnitt 7.6.2 gemessene lokale Unterschied in der Eindringtiefe beträgt $\Delta d_p = d_{p,\text{max}} - d_{p,\text{min}} = (11,2 \pm 3,0) \text{ nm}$. Dabei lag die gemessene maximale Eindringtiefe $d_{p,\text{max}}$ im Bereich des Intensitätsmaximums und die gemessene minimale Eindringtiefe $d_{p,\text{min}}$ im Bereich des Intensitätsminimums. Dieses Messergebnis deutet auf einen Brechungsindex $n_{3,2}$ im Bereich des Intensitätsmaximums, welcher kleiner ist als der Brechungsindex im Bereich des Intensitätsminimums $n_{3,1}$, hin; dies wird durch das Modell bestätigt (Abbildung 7.37). Der gemessene lokale Unterschied in der Eindringtiefe Δd_p führt bei der verwendeten Schicht der Dicke $d = (5,05 \pm 0,01) \mu\text{m}$ auf eine minimale induzierte Brechungsindexmodulation von $\Delta n > 0,026$ (Abbildung 7.39).

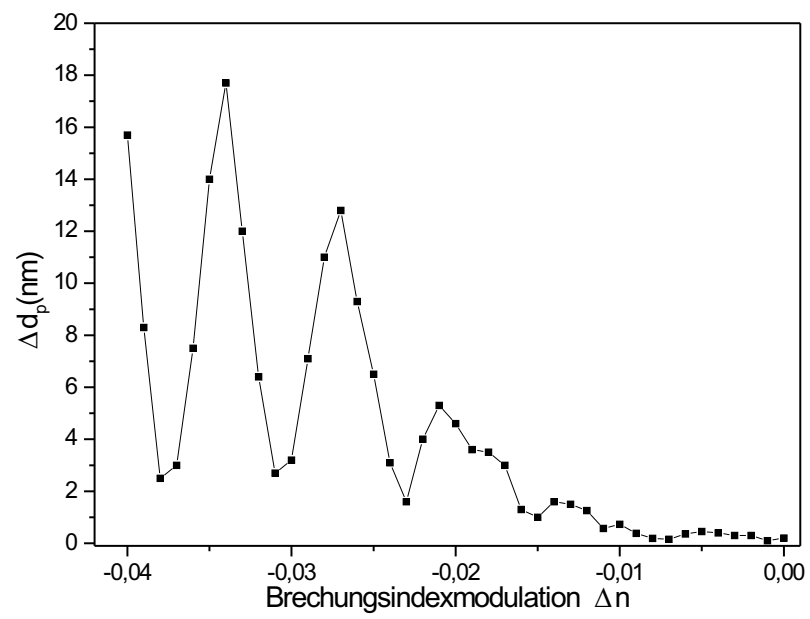


Abbildung 7.40: Abhängigkeit der maximalen Differenz in der Eindringtiefe Δd_p von der Brechungsindexmodulation Δn innerhalb der farbstoffdotierten Schicht für eine Schichtdicke $d = 5,05 \mu\text{m}$.

7.7.3 Interpretation des spektralen Verhaltens

Die Bestimmung der Brechungsindexmodulation Δn mit der mathematischen Modellierung (Abschnitt 7.7.2) ermöglicht eine Interpretation des in Abschnitt 7.2 beobachteten spektralen Verhaltens.

Das Anschwingen einer Wellenlänge wird auf die aus der Besetzungsinversion resultierenden Brechungsindexmodulation zurückgeführt: Aus dem spektralen Abstand $\Delta\lambda$ der anschwingenden Wellenlängen kann die Beugungseffizienz η des Reflexionsgitters in Abhängigkeit von der induzierten Brechungsindexmodulation berechnet werden (Abschnitt 3.2.2). Dazu wurde eine Software von D. Runde zur Verfügung gestellt [213], welche die Beugungseffizienz η nach Gleichung 3.22 numerisch simuliert.

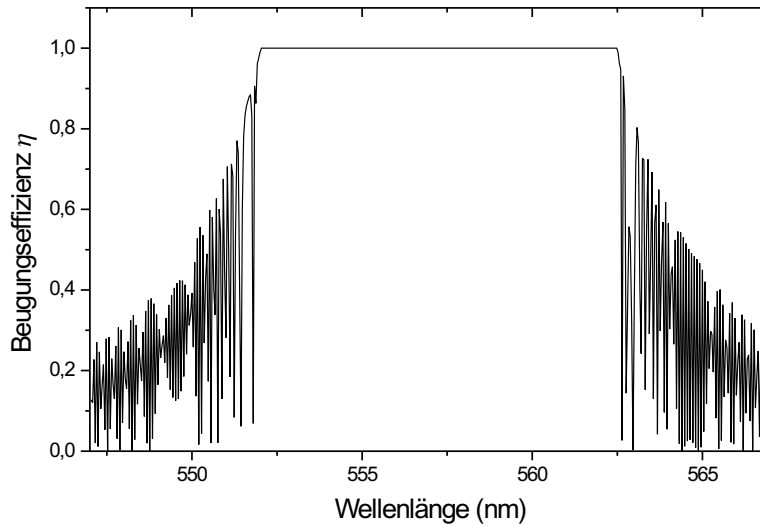


Abbildung 7.41: Numerische Berechnung der Beugungseffizienz η des induzierten Reflexionsgitters bei einer Modulation des Brechungsindex $\Delta n = 2,8 \cdot 10^{-2}$, einer Gitterperiode $\Lambda = 187 \text{ nm}$ und einer Länge des induzierten Gitters von $l = 1 \text{ mm}$.

Für die Simulation der in Abbildung 7.41 dargestellten Beugungseffizienz η des induzierten Reflexionsgitters wurde eine Modulation des Brechungsindex von $\Delta n = 2,8 \cdot 10^{-2}$ und eine Emissionswellenlänge $\lambda = 560 \text{ nm}$ und daraus resultierend eine Gitterperiode $\Lambda = 187 \text{ nm}$ (Gleichung 4.6 mit $n = 1,49$ für PMMA) angenommen. Es ergibt sich ein spektraler Bereich mit $\eta = 1$ einer Breite von $\Delta\lambda(\eta = 1) \approx 10 \text{ nm}$ (Abbildung 7.41). Abbildung 7.42 zeigt die Breite des spektralen Bereichs $\Delta\lambda(\eta = 1)$ in Abhängigkeit von der Brechungsindexmodulation Δn .

Das in Abbildung 7.41 dargestellte Simulationsergebnis zeigt, dass prinzipiell alle Wellenlängen im spektralen Bereich $\Delta\lambda(\eta = 1)$ anschwingen können. Es wurde jedoch bei

Verwendung des Microchip Lasers als Pumpquelle nur das diskrete Anschwingen einer nahezu bandbreitebegrenzten DFB-Wellenlänge beobachtet (Abschnitt 7.3). Diese Beobachtung lässt sich anhand der zeitlichen Entwicklung des lichtinduzierten Gitters erklären (siehe dazu auch Abschnitt 7.4): Das Brechungsindexgitter wird durch das Pumplicht auf- und durch die Emission eines DFB-Pulses abgebaut. Während des Aufbaus des Gitters werden nur Photonen in dem zunächst schmalen spektralen Bereich $\Delta\lambda(\eta_{\max})$ verstärkt (vgl. Abbildung 7.42). Erst wenn die Besetzungsinversion bzw. die Aufenthaltsdauer der DFB-Photonen im Resonator den Schwellwert erreicht, wird die volle Besetzungsinversion induziert, welche durch die zeitliche Mittelung über viele Pulse mit dem optischen Nahfeldmikroskop aufgelöst werden kann (Abschnitt 7.6.2). Durch diese zeitliche Entwicklung werden nahezu bandbreitebegrenzte DFB-Pulse emittiert.

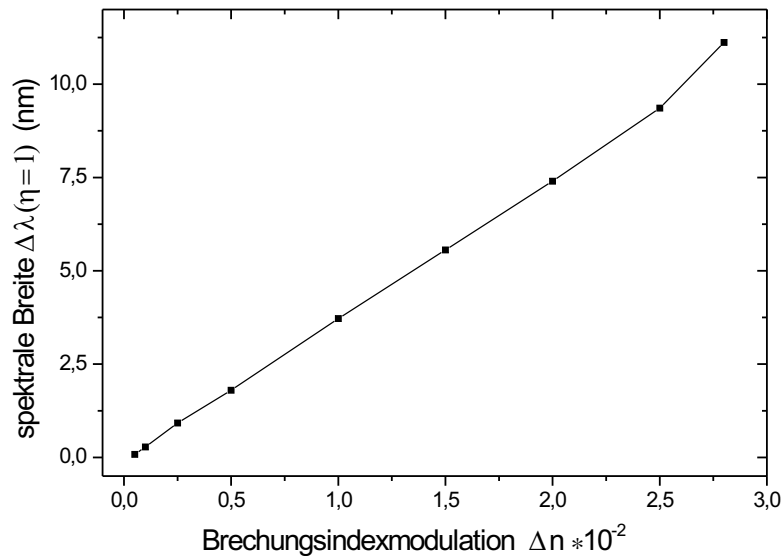


Abbildung 7.42: Breite des spektralen Bereichs $\Delta\lambda(\eta = 1)$ in Abhängigkeit von der Brechungsindexmodulation Δn .

7.7.4 Entwicklung eines Modells

Das Ergebnis der Brechungsindexmodulation Δn der mathematischen Modellierung (Abschnitt 7.7.2) weicht von den für Rhodamin 6G in Ethanol abgeschätzten Werten ab und ergibt eine deutlich größere Brechungsindexmodulation im Falle der verwendeten Polymermatrizen. Durch diese größere Modulation wird die Laserschwelle gesenkt (Abschnitt 4.2). Dieser Unterschied wird von experimentellen Ergebnissen gestützt: Es konnte keine DFB-Laseraktivität mit Ethanol bei einer Pumpimpulsenergie von $E = 0,3 \mu\text{J}$ er-

reicht werden. Der Unterschied in der realisierten Brechungsindexmodulation ist auf das spektrale Verhalten der Wirkungsquerschnitte σ_p , σ_e und σ_a und die Vernachlässigung der Anregung in Triplettzustände zurückzuführen (Abschnitt 7.7.1). Während für den Absorptions- und Emissionsquerschnitt σ_p bzw. σ_e für den Farbstoff in Ethanol und in einem Festkörper ein ähnliches Verhalten angenommen wird (Abbildung 7.1 und gemessene Fluoreszenzabklingzeiten von Rhodamin 6G in Ethanol, $\tau_f = (4,0 \pm 0,2)$ ns, und in PMMA, $\tau_f = (4,6 \pm 0,2)$ ns (Fußnote in Tabelle 7.2)), kann sowohl das spektrale Verhalten des Wirkungsquerschnitts σ_a als auch das zeitliche Verhalten der Reabsorption von Fluoreszenzphotonen in Abhängigkeit von dem Trägermaterial verschieden sein. Dieser Unterschied wird auf die kleinere Viskosität von Ethanol und damit eine kleinere Orientierungsrelaxationszeit τ_{or} des Farbstoffs in Ethanol im Vergleich zu einer Sol-Gel- bzw. PMMA-Schicht zurückgeführt (Abschnitt 4.1.1). So liegen die Orientierungsrelaxationszeiten τ_{or} für Lösungen mit niedriger Viskosität im Pikosekundenbereich (z.B.: Aceton: Viskosität $\eta = 4 \cdot 10^{-4}$ Pa s, Orientierungsrelaxationszeit $\tau_{or} = 90$ ps; Ethanol: $\eta = 1,2 \cdot 10^{-3}$ Pa s, $\tau_{or} = 310$ ps; Ethylenglykol: $\eta = 2 \cdot 10^{-2}$ Pa s, $\tau_{or} = 3000$ ps; [174]) und damit in der Größenordnung des eingestrahnten Pumpimpulses (Abbildung 5.14). Zusätzlich wird die Anregung in Triplett-Zustände durch die fehlende Umwälzung des Farbstoffes im Falle der Festkörpermatrix begünstigt (Abschnitt 4.1). Der Einfluss des Wirkungsquerschnitts σ_a für die Reabsorption von Fluoreszenzphotonen wurde bereits in Abschnitt 7.7.1 diskutiert: Eine Anregung des Farbstoffmoleküls erfolgt vorzugsweise bei einer parallelen Ausrichtung des Dipolmoments $\vec{\mu}$ zum induzierten Feld \vec{E} (Abschnitt 4.1 und [174]). Diese Abhängigkeit der Orientierung des Dipolmoments $\vec{\mu}$ zum induzierten Feld \vec{E} wird auch bei der Bestimmung von Wirkungsquerschnitten von Farbstoffmolekülen in Polymermatrizen beobachtet (Abschnitt 4.1 und [173]). Aufgrund der kleineren Viskosität ändert das Farbstoffmolekül in Ethanol schneller seine Orientierung im Trägermaterial und somit auch im eingestrahnten Lichtfeld des Pumpimpulses, als dies für eine Sol-Gel- bzw. PMMA-Schicht der Fall ist. Die Polarisation des eingestrahnten Lichtfeldes ist in der untersuchten Konfiguration parallel zum induzierten optischen Gitter (parallel zur y -Richtung in Abbildung 3.6 bzw. 5.12). Bei der Bestimmung des Wirkungsquerschnittes σ_a [171, 172] wird nur der Einfluss des eingestrahnten Feldes zu einem festen Zeitpunkt nach Einsetzen des Pumpimpulses berücksichtigt. Das zeitliche Verhalten und der Einfluss von induzierter Laseraktivität innerhalb des gepumpten Volumens wird nicht betrachtet. In dem hier untersuchten Aufbau ist jedoch besonders das Lichtfeld und deren zeitliches Verhalten von Interesse, welche innerhalb der DFB-Struktur verstärkt wird; im Folgenden als DFB-Photonen bezeichnet. Diese DFB-Photonen breiten sich senkrecht zum induzierten Gitter, d.h. parallel zur x -Richtung in Abbildung 3.6 bzw. 5.12, aus und „sehen“ bei Lösung des Farbstoffes in Ethanol eine andere Orientierungsverteilung als bei Lösung des Farbstoffes in PMMA. Die größeren Orientierungsrelaxationszeiten des Farbstoffs in PMMA bzw. Sol-Gel resultieren in einer größeren Reabsorption der DFB-Photonen, da die Polarisation des emittierten Strahlungsfeldes parallel zur Polarisationsrichtung des induzierten Lichtfeldes, d.h. parallel zur y -Richtung in Abbildung 5.12, ausgerichtet ist (Abschnitt 7.2). Dies führt zu einem spektralen Verlauf der Reabsorption, welcher von dem

Verlauf für Lösung in Ethanol verschieden ist. Dieser Unterschied beeinflusst maßgeblich das Verhalten der Änderung des Absorptionskoeffizienten $\Delta\alpha$ (Gleichung 4.1) bzw. das Verhalten der Änderung des Brechungsindex Δn (Gleichung 3.21) sowie der Lebensdauer der Schicht (Abbildung 7.10). Für eine Erhöhung der Stabilität der farbstoffdotierten Schichten und eine niedrige Laserschwelle ist demnach ein Farbstoff-Trägermaterial-System anzustreben, welches lange Orientierungsrelaxationszeiten τ_{or} der Farbstoffmoleküle im Trägermaterial aufweist, so dass eine starke Brechungsindexmodulation induziert wird, wodurch die Laserschwelle sinkt. Andererseits sollten die Zeiten derart kurz sein oder ein geeignetes Umwälzsystem zum Einsatz kommen, um eine übermäßige Belastung und somit die Zerstörung der Farbstoffmoleküle zu vermeiden (Abschnitt 7.4).

8 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein optisches Nahfeldmikroskop, welches eine Untersuchung von Proben in verschiedenen Betriebsmodi ermöglicht, aufgebaut. Durch geeignete Präparation der benötigten Faserspitzen und ihren Aperturen wurde eine laterale optische Auflösung von bis zu $\Delta x_{\text{opto}} = 70$ nm erreicht. Diese Auflösung wurde an teils selbst hergestellten Proben überprüft und bestätigt. Dabei wurde eine hohe Stabilität des Mikroskops während des Betriebs und eine gute Reproduzierbarkeit erreicht.

Das optische Nahfeldmikroskop wurde zunächst zur spektralen Charakterisierung verschiedener Rhodamin 6G-dotierter Sol-Gel- und PMMA-Schichten eingesetzt. Die zur Herstellung dieser Schichten verwendeten Lösungen wurden auch zur Präparation von DFB-Prismenlasern eingesetzt. Unter Verwendung eines miniaturisierten Microchiplasers als Pumpquelle wurden mit diesen Prismenlasern nahezu bandbreitebegrenzte DFB-Laserpulse mit Pulslängen von bis zu $\Delta t = 20$ ps bei einer spektralen Breite von $\Delta \lambda = 0,03$ nm und einer Wiederholrate von $\nu = 3$ kHz gemessen, wobei die Emissionswellenlänge dieser Pulse durch eine einfache Drehung des Prismas im Strahlengang des Pumplasers kontinuierlich von $\lambda_{\text{min}} = 562$ nm bis $\lambda_{\text{max}} = 626$ nm durchgestimmt werden kann.

Im DFB-Laserbetrieb wurden für die Sol-Gel-Schichten wesentlich niedrigere Stabilitäten als für die PMMA-Schichten beobachtet. PMMA-Schichten mit einem Molekulargewicht des PMMA von $MW=100000$ g/mol zeigten dabei die höchste Lebensdauer von bis zu $5 \cdot 10^5$ Pumpimpulsen. Die Schichten zeigten eine steigende Lebensdauer mit zunehmender Pumpimpulsintensität: Die Ergebnisse wurden mit Simulationsrechnungen basierend auf dem zugehörigen Ratengleichungsmodell verglichen, bestätigt und das Verhalten für weiter ansteigende Intensitäten postuliert: Mit zunehmender Intensität steigt die Anzahl der emittierten DFB-Pulse und das Medium wird zunehmend transparenter für das Pumplicht. Es wird angenommen, dass bei weiter ansteigender Intensität eine maximale Lebensdauer erreicht und für weiter steigende Intensität die Lebensdauer wieder verkleinert wird. Die Simulationsrechnungen ergeben auch, dass für kürzere Pumpimpulse eine Erhöhung der Lebensdauer erreicht werden kann. PMMA mit einem Molekulargewicht von $MW=100000$ g/mol wurde in folgenden Experimenten zur Herstellung weiterer DFB-Prismen zur Messungen des Kontrastverhältnisses der transienten DFB-Struktur und zur Messung lokaler Eindringtiefen des evaneszenten Feldes des Pumplichtes verwendet.

Die nahfeldmikroskopische Untersuchung an dem DFB-Lasersystem ermöglichte die direkte Messung des Kontrastverhältnisses des induzierten Gitters an einer reinen PMMA-Schicht und erstmals an einer farbstoffdotierten Schicht im Laserbetrieb. Dabei wurde für die farbstoffdotierte PMMA-Schicht bei konstanter Pumpenergie eine Abnahme des Kontrastverhältnisses von $V = 0,93$ im DFB-Laserbetrieb auf $V = 0,64$ nach Erlöschen des

DFB-Lasers detektiert. Diese Abnahme des Kontrastverhältnisses wird auf die Selbstbeugung an einem permanenten induzierten Konzentrationsgitter zurückgeführt.

Die aus den parallelen zeitaufgelösten Messungen des Kontrastverhältnisses, des zeitlichen und des spektralen Verhaltens des DFB-Signals im Laserbetrieb und nach Erlöschen des Lasersignals gewonnenen Daten ermöglichen einen Vergleich mit dem theoretischen Ratenvergleichsmodell. Dieser Vergleich ergibt, dass das Ansteigen der DFB-Laserschwelle auf die Abnahme der Teilchendichte im gepumpten Volumen und die Abnahme des Kontrastverhältnisses zurückzuführen ist.

Unter Verwendung des Nahfeldmikroskops wurden Messungen zur Bestimmung der lokalen Eindringtiefe d_p des evaneszenten Feldes an reinen und farbstoffdotierten PMMA-Schichten nach Detektion eines optischen Gitters an festen Bildpositionen durchgeführt. Dabei zeigten sich starke lokale Unterschiede in der Eindringtiefe von $\Delta d_p = 10,8$ nm im Laserbetrieb. Nach Erlöschen des Lasers wurden diese Unterschiede nicht mehr detektiert. Diese Differenz wird auf eine lokale Änderung des Brechungsindex, hervorgerufen durch die Ausbildung eines starken lichtinduzierten transienten Populationsdichtegitters, in der farbstoffdotierten Schicht zurückgeführt: Die Variation des Brechungsindex ist über die Kramers-Krönig-Relationen direkt mit der resultierenden Variation des Absorptionskoeffizienten und darüber mit der Teilchendichte im ersten angeregten Singulettzustand des eingesetzten Laserfarbstoffes verknüpft. Simulationsrechnungen ergeben, dass die gemessenen starken lokalen Unterschiede in der Eindringtiefe nur detektiert werden können, wenn lokal eine Besetzungsinversion vorliegt. Dieses Simulationsergebnis stimmt mit den Messungen überein: nur im DFB-Laserbetrieb konnte ein lokaler Unterschied in der Eindringtiefe aufgelöst werden.

Diese Messungen ermöglichen erstmals orts aufgelöste quantitative Rückschlüsse auf die Variation des Brechungsindex bzw. des Absorptionskoeffizienten im Laserbetrieb und ermöglichen die Detektion der lokalen Besetzungsinversion.

Die zeitintensiven nahfeldmikroskopischen Messungen wurden durch die kurze Lebensdauer der dotierten Schichten erschwert. Vor weiterführenden nahfeldmikroskopischen Untersuchung ist es daher sinnvoll, diese Lebensdauer zu erhöhen. Messungen mit unterschiedlichen Trägermaterialien ergaben, dass die Stabilität der farbstoffdotierten Schichten stark von der Viskosität des verwendeten Trägermaterials abhängt. Vergleiche dieser Ergebnisse mit einem molekularen Modell deuten auf eine starke Abhängigkeit des Orientierungsverhaltens der Farbstoffmoleküle im Trägermaterial. Auf Basis der gewonnenen Ergebnisse wurde ein Modell entwickelt, welches die stabilitätsbestimmenden Eigenschaften von Farbstoff-Trägermaterial-Systemen herausstellt und so die Entwicklung zukünftiger Systeme vereinfacht.

Zur Prüfung dieses Modells werden derzeit Messungen der Orientierungsrelaxationszeiten τ_{or} von Rhodamin 6G in verschiedenen Sol-Gel- und PMMA-Schichten mit verschiedenen Molekulargewichten basierend auf den von D. W. Phillion et al. [214] durchgeführten Beugungsexperimenten an transienten Gittern im Rahmen einer Diplomarbeit von A.

Pohlkötter durchgeführt [212]. Diese Messungen werden durch die Untersuchung der Laserstabilität und das Verhalten für hohe Pumpleistungen und kurze Pumppulse für verschiedene Sol-Gel-Farbstoff-Schichten im Rahmen einer Diplomarbeit von A. Steinmann ergänzt [181].

Parallel zu den genannten laserfarbstoffbasierten Systemen werden derzeit im Rahmen einer Diplomarbeit von M. Esselborn [215] mögliche DFB-Lasersysteme auf Basis von Zinkoxid (ZnO) untersucht. Dazu werden Messungen an klassischen laserfarbstoffbasierten DFB-Aufbauten [161, 162] mit ZnO-Schichten durchgeführt. Die Laseraktivität von ZnO-Schichten bei Raumtemperatur konnte bereits von D.M. Bagnall et al. 1997 [216] gezeigt werden und ist seitdem Bestandteil der aktuellen Forschung [217, 218]. Die bisherigen Ergebnisse deuten auf einen möglichen Einsatz von ZnO-Schichten in einem DFB-Aufbau hin, wodurch aufgrund des bisher nicht detektierten Ausbleichens bzw. Alterns der Schichten nahfeldmikroskopische Untersuchungen der DFB-Struktur im Laserbetrieb deutlich erleichtert und zeitaufgelöste Pump-Probe-Messungen des Auf- und Abbaus der DFB-Struktur ermöglicht werden dürften.

9 Anhang

9.1 Kramers-Krönig-Relationen

Die komplexe Dielektrizitätskonstante oder auch dielektrische Funktion $\tilde{\epsilon}$ ist eine Materialkonstante und verknüpft das elektrische Feld \vec{E} mit der elektrischen Flussdichte \vec{D} sowie der Polarisation \vec{P} des Materials und der elektrischen Suszeptibilität $\tilde{\chi}$:

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \tilde{\chi}(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (9.1)$$

$$= \epsilon_0 (\tilde{\epsilon} - 1) \vec{E}(\omega) , \quad (9.2)$$

$$\vec{D}(\omega) = \tilde{\epsilon} \vec{E}(\omega) + \vec{P}(\omega) \quad (9.3)$$

$$= \epsilon_0 (1 + \tilde{\chi}(\omega)) \vec{E}(\omega) \quad (9.4)$$

$$= \epsilon_0 \tilde{\epsilon}(\omega) \vec{E}(\omega) . \quad (9.5)$$

Die Polarisation lässt sich über ein Oszillatormodell eines schwingenden Elektrons beschreiben. Dabei ergeben sich für freie Atome aufgrund der möglichen Elektronenübergänge und bei Festkörpern aufgrund der möglichen Übergänge zwischen den Bändern (Isolatoren) und innerhalb der Bänder (Metalle) mehrere Resonanzfrequenzen.

Die elektrische Suszeptibilität $\tilde{\chi}$ bildet eine in der oberen Halbebene analytische Funktion, so dass gilt:

$$H \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{\chi}(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' = i\pi \tilde{\chi}(\omega) . \quad (9.6)$$

Für $\tilde{\chi} = \chi_r + i\chi_i$ bilden dann

$$\chi_r(\omega) = \frac{1}{\pi} H \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi_i(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \quad \text{und} \quad (9.7)$$

$$\chi_i(\omega) = -\frac{1}{\pi} H \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi_r(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \quad (9.8)$$

die gegenseitigen Hilbert-Transformationen (H bedeutet, dass bei der Integration mit Hilfe des Residuensatzes der Hauptwert des Integrals ohne die Polstelle bei $\omega' = \omega$ berechnet wird.). Die Relationen werden nach Anwendung des Kausalitätsprinzips ($\tilde{\chi}(t - t') = 0$ für $t < t'$) und der daraus folgenden Beziehung $\tilde{\chi}(-\omega) = \tilde{\chi}^*(\omega)$ derart umgeformt, dass die Integrationsgrenzen nur den positiven Frequenzraum abdecken [219]. Diese Relationen sind als Kramers-Krönig-Relationen bekannt:

$$\chi_r(\omega) = \frac{2}{\pi} H \int_0^{\infty} \frac{\omega' \chi_i(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' , \quad (9.9)$$

$$\chi_i(\omega) = -\frac{2}{\pi} H \int_0^{\infty} \frac{\omega' \chi_r(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' . \quad (9.10)$$

Diese Relationen lassen sich durch Substitution in Abhängigkeit von anderen Materialparametern bringen. Im Bereich optischer Frequenzen unterhalb der Resonanzfrequenz(en) ist die dielektrische Funktion $\tilde{\epsilon}$ mit dem komplexen Brechungsindex $\tilde{n}(\omega)$ verknüpft. So gelten für die dielektrische Funktion $\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_r(\omega) + i\epsilon_i(\omega) = \tilde{\chi}(\omega) + 1$ und für den komplexen Brechungsindex $\tilde{n}^2 = (n + i\kappa)^2 = \tilde{\epsilon}(\omega)$, wobei n den Realteil des Brechungsindex und κ den des Absorptionsindex bezeichnet. Es ergeben sich folgende Substitutionen:

$$\begin{aligned} \chi_r(\omega) &= \epsilon_r - 1 = n^2 - \kappa^2 - 1 , \\ \chi_i(\omega) &= \epsilon_i = 2n\kappa . \end{aligned} \quad (9.11)$$

Es folgt für die Kramers-Krönig-Relationen in Abhängigkeit vom Brechungsindex n und dem Absorptionsindex κ :

$$n^2(\omega) - \kappa(\omega)^2 - 1 = \frac{2}{\pi} H \int_0^{\infty} \frac{\omega' 2n(\omega')\kappa(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' , \quad (9.12)$$

$$2n(\omega)\kappa(\omega) = -\frac{2}{\pi} H \int_0^{\infty} \frac{\omega(n^2(\omega') - \kappa(\omega')^2 - 1)}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' . \quad (9.13)$$

Für schwache Dotierungen des Wirtsmaterials mit Brechungsindex n_w und Permittivität $\epsilon_w = 1 + \chi_w = n_w^2$ sind die Polarisierungen additiv und die Suszeptibilitäten addieren sich zu $\chi_w + \tilde{\chi}_{\text{dot}}$ [186]. Mit $\kappa = (2\pi n(\omega)\alpha(\omega))/c$ (α bezeichnet den Absorptionskoeffizienten.) erhalten die Kramers-Krönig-Relationen 9.7 und 9.8 die Form [220]:

$$n(\omega) - 1 = \frac{1}{\pi} H \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\alpha(\omega')c}{2\omega'(\omega' - \omega)} d\omega' , \quad (9.14)$$

$$n\kappa = \frac{\alpha(\omega)c}{2\omega} = \frac{1}{\pi} H \int_{-\infty}^{\infty} \frac{n(\omega') - 1}{\omega' - \omega} d\omega' . \quad (9.15)$$

Mit Hilfe der Näherung

$$\tilde{n} = \sqrt{1 + \tilde{\chi}} \approx 1 + \tilde{\chi}/2 \quad (9.16)$$

ergibt sich aus Gleichung 9.9:

$$2(n(\omega) - 1) = \frac{2}{\pi} H \int_0^{\infty} \frac{\omega' 2n(\omega')\kappa(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' . \quad (9.17)$$

Mit der Substitution $\omega = 2\pi c/\lambda$ folgt:

$$n(\lambda) - 1 = \frac{1}{2\pi^2} H \int_0^{\infty} \frac{\alpha(\lambda')}{1 - (\lambda'/\lambda)^2} d\lambda' . \quad (9.18)$$

Mit Hilfe dieser Gleichung gelingt es durch Detektion von wellenlängenabhängigen Änderungen des Absorptionskoeffizienten Rückschlüsse auf Änderungen des Brechungsindex zu ziehen:

$$\Delta n(\lambda) = \frac{1}{2\pi^2} H \int_0^\infty \frac{\Delta \alpha(\lambda')}{1 - (\lambda'/\lambda)^2} d\lambda' . \quad (9.19)$$

Literaturverzeichnis

- [1] D. von der Linde und A. M. Glass. *Photorefractive effects for reversible holographic storage of information*. Applied Physics, **8**, 85–100, (1975).
- [2] D. W. Pohl, W. Denk und M. Lanz. *Optical stethoscopy: image recording with resolution $\lambda/20$* . Applied Physics Letters, **44**(7), 651–653, (1984).
- [3] C. V. Shank, J. E. Bjorkholm und H. Kogelnik. *Tunable distributed-feedback dye laser*. Applied Physics Letters, **18**(4), 395–397, (1971).
- [4] T. Voss, D. Scheel und W. Schade. *A microchip-laser-pumped DFB-polymer-dye laser*. Applied Physics B, **73**(2), 105–110, (2001).
- [5] H. Kogelnik und C. V. Shank. *Stimulated emission in a periodic structure*. Applied Physics Letters, **18**(4), 152–154, (1971).
- [6] R. Sastre und A. Costela. *Polymeric solid-state dye lasers*. Advanced Materials, **2**, 198–202, (1995).
- [7] D. Lo, J. E. Parris und J. L. Lawless. *Laser and fluorescence properties dye-doped solgel silica from 400 nm to 800 nm*. Applied Physics B, **56**, 385–390, (1993).
- [8] S.-S. Yap, W.-O. Siew, T.-Y. Tou und S.-W. Ng. *Red-green-blue laser emissions from dye-doped poly(vinyl alcohol) films*. Applied Optics, **41**(9), 1725–1728, (2002).
- [9] Y. Oki, S. Miyamoto und M. Maeda. *Multiwavelength distributed-feedback dye laser array and its application to spectroscopy*. Optics Letters, **27**(14), 1220–1222, (2002).
- [10] D. Kip und J. Hukriede. Holographic reflection filters in photorefractive lithium niobate channel waveguides. In P. Boffi, D. Piccinin und M. C. Ubaldi, Herausgeber, *Topics in Applied Physics: IR Holography for Optical Communications*, Band 86, Seiten 111–128. Springer-Verlag, Berlin, 2003.
- [11] D. Runde und D. Kip. *Holographic reflection filters in channel waveguides for applications as optical sensors and add/drop multiplexers*. TU Clausthal, to be published, 2003.

- [12] M. Basheer Ahamed und P. K. Palanisamy. *Nd:YAG laser pumped energy transfer distributed feedback dye laser in rhodamine 6g and acid blue 7 dye mixture*. Optics Communications, **213**, 67–80, (2002).
- [13] M. Ahmad, T. A. King, D.-K. Ko, B. H. Cha und J. Lee. *Photostability of lasers based on pyromethene 567 in liquid and solid-state host media*. Optics Communications, **203**, 327–334, (2002).
- [14] B. F. Howell und M. G. Kuzyk. *Amplified spontaneous emission and recoverable photodegradation in polymer doped with disperse orange 11*. Journal of the Optical Society of America B, **19**(8), 1790–1793, (2002).
- [15] A. Deshpande und E. Namdas. *Correlation between lasing and photophysical performance of dyes in polymethylmetacrylate*. Journal of Luminescence, **91**, 25–31, (2000).
- [16] N. A. George, B. Aneeshkumar, P. Radhakrishnan und C. P. G. Vallabhan. *Photoacoustic study on photobleaching of rhodamine 6g doped in poly(methyl metacrylate)*. Journal of Physics D: Applied Physics, **32**(8), 1745–1749, (1999).
- [17] A. Hartschuh, E. J. Sánchez, X. S. Xie und L. Novotny. *High resolution near-field raman microscopy of single-walled carbon nanotubes*. Physical Review Letters, **90**(9), 095503, (2003).
- [18] G. Eggers, A. Rosenberger, N. Held, A. Münnemann, G. Güntherodt und P. Fumagalli. *Scanning near-field magneto-optic microscopy using illuminated fiber tips*. Ultramicroscopy, **71**, 249–256, (1998).
- [19] Y. Shen, P. Markowicz, J. Winiarz, J. Swiatkiewicz und P. N. Prasad. *Nanoscopic study of second-harmonic generation in organic crystals with collection-mode near-field scanning optical microscope*. Optics Letters, **26**(10), 725–727, (2001).
- [20] H. Fukuda. *Near-field photocurrent measurements of Si p-n junction under reverse-bias condition*. Japanese Journal of Applied Physics, **40**, L286–L288, (2001).
- [21] W. Schade, D. L. Osborn, J. Preusser und S. R. Leone. *Two-color cross-correlation of fs-laser pulses by two-photon induced photoconductivity for near and far field optical measurements*. Optics Communications, **150**, 27–32, (1998).
- [22] W. Schade, J. Preusser, D. L. Osborn, Y. Y. Lee, J. deGouw und W. D. Hinsberg. *Spatially resolved femtosecond time correlation measurements on a GaAsP photodiode*. Optics Communications, **162**, 200–204, (1999).
- [23] I. I. Smolyaninov und C. C. Davis. *Micromachining of diamond with a near-field scanning optical microscope*. Optics Letters, **26**(19), 1495–1497, (2001).
- [24] E. Hecht. *Optik*. Oldenbourg Verlag, 1999.

- [25] H.-J. Eichler, A. Fleischer, J. Kross, M. Krystek, H. Lang, H. Niedrig, H. Rauch, G. Schmahl, H. Schoenebeck, E. Sedlmayr, H. Weber und K. Weber. *Bergmann - Schaefer: Optik*. Walter de Gruyter & Co., 1993.
- [26] S. G. Lipson, H. S. Lipson und D. S. Tannhauser. *Optik*. Springer Verlag, 1997.
- [27] E. Synge. *A suggested method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region*. Philosophical Magazine, **6**, 356–362, (1928).
- [28] H. Bethe. *Theory of diffraction by small holes*. Physical Review, **66**, 163–182, (1944).
- [29] B. Hecht, B. Sick, U. P. Wild, V. Deckert, R. Zenobi, O. J. F. Martin und D. W. Pohl. *Scanning near-field optical microscopy with aperture probes: Fundamentals and applications*. Journal of Chemical Physics, **112**(18), 7761–7774, (2000).
- [30] J. A. o’Keefe. *Resolving power of visible light*. Journal of the Optical Society of America, **46**(5), 359, (1956).
- [31] E. A. Ash und G. Nicholls. *Super-resolution aperture scanning microscope*. Nature, **237**, 510–512, (1972).
- [32] G. Binnig und H. Rohrer. *Scanning tunneling microscopy*. Helvetica Physica Acta, **55**, 726–735, (1982).
- [33] H. Heinzelmann und D.W. Pohl. *Scanning near-field optical microscopy*. Applied Physics A, **59**(2), 89–102, (1994).
- [34] M. Paesler und P. Moyer. *Near-field optics: theory, instrumentation, and applications*. John Wiley & Sons Inc., 1996.
- [35] M. Ohtsu. *Near-Field Nano/Atom Optics and Technology*. Springer Verlag, 1998.
- [36] F. de Fornel. *Evanescent waves: from Newtonian optics to atomic optics*. Springer Verlag, 2000.
- [37] R. Kassing, I. W. Rangelow, E. Oesterschulte und M. Stuke. *Sensors for scanning probe microscope*. Applied Physics A, **76**(6), 907–911, (2003).
- [38] N. F. Van Hulst, N. P. De Boer und B. Bolger. *An evanescent-field optical microscope*. Journal of Microscopy, **163**(2), 117–130, (1991).
- [39] D. C. Prieve und J. Y. Walz. *Scattering of an evanescent surface wave by a microscopic dielectric sphere*. Applied Optics, **32**(9), 1629–1641, (1993).
- [40] J. Preußner. *Titel noch nicht bekannt*. Dissertation, Technische Universität Clausthal, 2003.

- [41] F. Zenhausern, Y. Martin und H. Wickramasinghe. *Scanning interferometric apertureless microscopy - optical imaging at 10 Angstrom resolution*. Science, **269**(5227), 1083–1085, (1995).
- [42] U. Fischer und D. Pohl. *Observation of single-particle plasmons by near-field optical microscopy*. Physical Review Letters, **62**(4), 458–461, (1989).
- [43] C. Girard, O. J. F. Martin und A. Dereux. *Molecular lifetime changes induced by nanometer scale optical fields*. Physical Review Letters, **75**(17), 3098–3101, (1995).
- [44] E. J. Sánchez, L. Novotny und X. S. Xie. *Near-field fluorescence microscopy based on two-photon excitation with metal tips*. Physical Review Letters, **82**(20), 4014–4017, (1999).
- [45] U. Dürig, D. W. Pohl und H. Rohrer. *Near-field optical-scanning microscopy*. Journal of Applied Physics, **59**(10), 3318–3327, (1986).
- [46] A. Harootunian, E. Betzig, M. Isaacson und A. Lewis. *Super-resolution fluorescence near-field scanning optical microscopy*. Applied Physics Letters, **49**(11), 674–676, (1986).
- [47] E. Betzig, P. L. Finn und J. S. Weiner. *Combined shear force and near-field scanning optical microscopy*. Applied Physics Letters, **60**(20), 2484–2486, (1992).
- [48] R. Toledo-Crow, P. C. Yang, Y. Chen und M. Vaez-Iravani. *Near-field differential scanning optical microscope with atomic force regulation*. Applied Physics Letters, **60**(24), 2957–2959, (1992).
- [49] S. I. Bozhevolnyi. *Topographical artifacts and optical resolution in near-field optical microscopy*. Journal of the Optical Society of America B, **14**(9), 2254–2259, (1997).
- [50] B. Hecht, H. Bielefeld, Y. Inouye, D. W. Pohl und L. Novotny. *Facts and artifacts in near-field optical microscopy*. Journal of Applied Physics, **81**(6), 2492–2498, (1997).
- [51] D. Barchiesi, O. Bergossi, C. Pieralli und M. Spajer. *Reflection scanning near-field optical microscopy (R-SNOM) in constant height mode with a dielectric probe image interpretation and resolution for high topographic variations*. Ultramicroscopy, **71**, 361–370, (1998).
- [52] P. J. Valle, J.-J. Greffet und R. Carminati. *Optical contrast, topographic contrast and artifacts in illumination-mode scanning near-field optical microscopy*. Journal of Applied Physics, **86**(1), 648–656, (1999).
- [53] D. A. Lapshin, V. N. Reshetov, S. K. Sekatskii und V. S. Letokhov. *Contact mode near-field microscope*. Ultramicroscopy, **76**, 13–20, (1999).

- [54] I. I. Smolyaninov, W. A. Atia, S. Pilevar und C. C. Davis. *Experimental study of probe-surface interaction in near-field optical microscopy*. Ultramicroscopy, **71**, 177–182, (1998).
- [55] B. Hecht. *Forbidden Light Scanning Near-Field Optical Microscopy*. Dissertation, Universität Basel, 1996.
- [56] R. L. Williamson, L. J. Brereton, M. Antognozzi und M. J. Miles. *Are artefacts in scanning near-field optical microscopy related to the misuse of shear-force?* Ultramicroscopy, **71**, 165–175, (1998).
- [57] P. Moar, F. Ladouceur und L. Cahill. *Numerical analysis of the transmission efficiency of heat-drawn and chemically etched scanning near-field optical microscopes*. Applied Optics, **39**(12), 1966–1972, (2000).
- [58] 3M, weltweit. *Data Sheet: Visible Wavelength Fiber FS-SN-3224*, (2002).
- [59] D. Lutzke. *Lichtwellenleiter-Technik*. Richard Pflaum Verlag, München, 1986.
- [60] T. Pangaribuan, K. Yamada, S. Jiang, H. Ohsawa und M. Ohtsu. *Reproducible fabrication technique of nanometric tip diameter fiber probe for photon scanning tunneling microscope*. Japanes Journal of Applied Physics, **31**, L1302–L1304, (1992).
- [61] D. Zeisel, S. Nettesheim, B. Dutoit und R. Zenobi. *Pulsed laser induced desorption and optical imaging on a nanometer scale with scanning near-field microscopy using chemically etched fiber tips*. Applied Physics Letters, **68**(18), 2491–2492, (1996).
- [62] D. R. Turner. U.S. Patent 4,469,554. Etch procedure for optical fibers, April 1983.
- [63] E. Betzig, J. K. Trautmann, T. D. Harris, J. S. Weiner und R. L. Kostelak. *Breaking the diffraction barrier: Optical microscopy on a nanometric scale*. Science, **251**, 1468–1470, (1991).
- [64] P. Hoffmann, B. Dutoit und R.-P. Salthé. *Comparison of mechanically drawn and protection layer chemically etched optical fiber tips*. Ultramicroscopy, **61**, 165–170, (1995).
- [65] S. Madsen, N. C. R. Holme, P. S. Ramanujam, S. Hvilsted, J. M. Hvam und S. J. Smith. *Optimizing the fabrication of aluminium-coated fiber probes and their application to optical near-field lithography*. Ultramicroscopy, **71**, 65–71, (1998).
- [66] M. N. Islam, X. K. Zhao, A. A. Said, S. S. Mickel und C. F. Vail. *High efficiency and high-resolution fibre-optic probes for near field imaging and spectroscopy*. Applied Physics Letters, **71**(20), 2886–2888, (1997).
- [67] M. Xiao, J. Nieto, R. Machorro, J. Siqueiros und H. Escamilla. *Fabrication of probe tips for reflection scanning near-field optical microscopes: chemical etching*

- and heating-pulling methods.* Journal of Vacuum Science & Technology B, **15**(4), 1516–1520, (1997).
- [68] A. Sayah, C. Philipona, P. Lambelet, M. Pfeffer und F. Marquis-Weible. *Fiber tips for scanning near-field optical microscopy fabricated by normal and reverse etching.* Ultramicroscopy, **71**, 59–63, (1998).
- [69] P. Lambelet, A. Salah, M. Pfeffer, C. Philipona und F. Marquis-Weible. *Chemically etched fiber tips for near-field optical microscopy: a process for smoother tips.* Applied Optics, **37**(31), 7289–7292, (1998).
- [70] R. Stöckle, C. Fokas, V. Deckert, R. Zenobi, B. Sick, B. Hecht und U. P. Wild. *High-quality near-field optical probes by tube etching.* Applied Physics Letters, **75**(2), 160–162, (1999).
- [71] S. Stürmer, J. M. Köhler und T. M. Jovin. *Microstructured polymer tips for scanning near-field optical microscopy.* Ultramicroscopy, **71**, 107–110, (1998).
- [72] M. Abraham, W. Ehrfeld, M. Lacher, K. Mayr, W. Noell, P. Günthner und J. Barenz. *Micromachined aperture probe tip for multifunctional scanning probe microscopy.* Ultramicroscopy, **71**, 93–98, (1998).
- [73] P. N. Minh, T. Ono, S. Tanaka und M. Esashi. *Near-field optical apertured tip and modified structures for local enhancement.* Applied Optics, **40**(15), 2479–2484, (2001).
- [74] B. J. Kim, J. W. Flamma, E. S. Ten Have, M. F. Garcia-Parajo, N. F. van Hulst und J. Brugger. *Moulded photoplastic probes for near-field optical applications.* Journal of Microscopy, **202**(1), 16–21, (2001).
- [75] H. Muramatsu, N. Chiba, N. Yamamoto, K. Homma, T. Ataka, M. Shigeno, H. Monobe und M. Fujihira. *Multi-functional SNOM/AFM probe with accurately controlled low spring constant.* Ultramicroscopy, **71**, 73–79, (1998).
- [76] S. Heisig und E. Oesterschulte. *Gallium arsenide probes for scanning near-field probe microscopy.* Applied Physics A, **66**, S385–S390, (1998).
- [77] M. Castagné, B. Belier, P. Gall, M. Benefedda, C. Seassal, A. Spisser, J. L. Leclerc und P. Viktorovich. *New optical probes using InP-based cantilevers.* Ultramicroscopy, **71**, 81–84, (1998).
- [78] S. Heisig, H.-U. Danzebrink, A. Leyk, W. Martin, S. Münster und E. Oesterschulte. *Monolithic gallium arsenide cantilever for scanning near-field microscopy.* Ultramicroscopy, **71**, 99–105, (1998).
- [79] H. U. Danzebrink, A. Castiaux, C. Girard, X. Bouju und G. Wilkening. *Transmission scanning near-field optical microscopy with uncoated silicon tips.* Ultramicroscopy, **71**, 371–377, (1998).

- [80] M. Castagné, M. Benefedda, S. Lahimer, P. Falgayrettes und J. P. Fillard. *Near field behaviour of C supertips*. Ultramicroscopy, **76**, 187–194, (1999).
- [81] G. Schürmann, W. Noell, U. Staufer, N. F. de Rooji, R. Eckert, J. M. Freyland und H. Heinzelmann. *Fabrication and characterization of silicon cantilever probe with an integrated quartz-glass (fused-silica) tip for scanning near-field optical microscope*. Applied Optics, **40**(28), 5040–5045, (2001).
- [82] J. Michealis, C. Hettich, J. Mlynek und V. Sandoghar. *Optical microscopy using a single-molecule light source*. Nature, **405**, 325–328, (2000).
- [83] H. Lizhong, S. Jie, M. Qingduan, S. Yingmei und Z. Yu. *Al_{0.3}Ga_{0.7}As microtips grown by self-assembled LPE for integrated SNOM sensors*. Journal of Crystal Growth, **240**, 98–103, (2002).
- [84] Korth Kristalle GmbH, Altenholz. *Datenblatt kristalliner Quarz SiO₂*, 2002.
- [85] Sutter Instrument Company, Novato, USA. *Operation Manual P-2000 Micropipette Puller*, 1999.
- [86] J. L. Munoz und J. Coles. *Quartz micropipettes for intracellular voltage micro-electrodes and ion selective microelectrodes*. Journal of Neuroscience Methods, **22**, 57–64, (1987).
- [87] G. A. Valaskovic, M. Holton und G. H. Morrison. *Parameter control, characterization and optimization in the fabrication of optical fiber near-field probes*. Applied Optics, **34**(7), 1215–1228, (1995).
- [88] U. Thiele. Private Korrespondenz. FU Berlin, seit 1999.
- [89] G. Polanski und J. P. Toennis. *The growth mode of aluminium on silver (111)*. Surface Science, **260**, 250–256, (1992).
- [90] N. G. Semaltionos. *Thermally evaporated aluminium thin films*. Applied Surface Science, **183**, 223–229, (2001).
- [91] E. D. Palik. *Handbook of Optical Constants of Solids*. Academic Press, New York, 1985.
- [92] Leybold Inficon, East Syracuse, New York 13057. *Datenblatt: Sentinel III Deposition Controller*, 1989.
- [93] J. G. Miller und D. I. Bolef. *Sensitivity enhancement by the use of acoustic resonators in cw ultrasonic spectroscopy*. Journal of Applied Physics, **39**(10), 4589–4593, (1968).
- [94] J. G. Miller und D. I. Bolef. *Acoustic wave analysis of the operation of quartz-crystal film-thickness monitors*. Journal of Applied Physics, **39**(10), 5815–5816, (1968).

- [95] Chih-Shun Lu. *Mass determination with piezoelectronic quartz crystal resonators*. Journal of Vacuum Science & Technology, **12**(1), 578–583, (1975).
- [96] J. A. Veerman, A. M. Otter, L. Kuipers und N. F. van Hulst. *High definition aperture probes for near-field optical microscopy fabricated by focused ion beam milling*. Applied Physics Letters, **72**(24), 3115–3117, (1998).
- [97] S. Pilevar, K. Edinger, W. Atia, I. Smolyaninov und C. Davis. *Focused ion-beam fabrication of fiber probes with well-defined apertures for use in near-field scanning optical microscopy*. Applied Physics Letters, **72**(24), 3133–3135, (1998).
- [98] T. Lacoste, T. Huser, R. Prioli und H. Heinzelmann. *Contrast enhancement using polarisation-modulation scanning near-field optical microscopy (PM-SNOM)*. Ultramicroscopy, **71**, 333–340, (1998).
- [99] PI-Physik Instrumente, Waldbronn. *Datenblatt: PZT Performance Test Document P-731.20*, (2000).
- [100] BMC-Systeme GmbH, Puchheim. *Datenblatt: PIO-II, I/O-Karte mit 24 digitalen Kanälen*, 2000.
- [101] TU-Clausthal, Clausthal-Zellerfeld. *Datenblatt: Verstärkerstufe für Verschiebetisch-einheit*, 2000.
- [102] Paul F. Schröder & Co. Spezialglastechnik, Ellerau. *Macor, Bearbeitbares Keramisches Glas*, (1999).
- [103] Newport, Darmstadt. *Produktkatalog Newport*, 2000.
- [104] OWIS GmbH, Staufen i. Br. *Datenblatt: DIGI-MIC SM 30*, 2000.
- [105] OWIS GmbH, Staufen i. Br. *Datenblatt: Schrittmotorsteuerkarte PC-SM 30*, 2000.
- [106] NEC by Thorlabs GmbH, Grünberg. *Specification Sheet: Piezo-Electric Multi-Layer Actuator AE0505D08*, (2000).
- [107] TU-Clausthal, Clausthal-Zellerfeld. *Kurzanleitung: HV-Amplifier (10x)*, (1998).
- [108] Keithley Instruments GmbH, Germering. *Datenblatt: ADWIN-2L/4L*, 2000.
- [109] Keithley Instruments GmbH, Germering. *ADBASIC*, 2000.
- [110] Scientific Instruments GmbH, Gilching. *Datenblatt: SR-830 Lock-In-Verstärker*, 2000.
- [111] PI-Physikinstrumente Ceramic GmbH, Lederhose. *Datenblatt: serielle Biegeelemente; Material: PIC151*, 2000.
- [112] T-E-Klebertechnik, Hannover. *Produktübersicht: TEK-ACRYL*, (2000).

- [113] E. Betzig und J. K. Trautmann. *Near-field optics: microscopy, spectroscopy, and surface modification beyond the diffraction limit*. Science, **257**, 189–195, (1992).
- [114] M. Garcia-Parajo, E. Cambril und Y. Chen. *Simultaneous scanning tunneling microscope and collection mode scanning near-field optical microscope using gold coated optical fiber probes*. Applied Physics Letters, **65**(12), 1498–1500, (1994).
- [115] Y. Chen, M. Garcia-Parajo, Y. Lagadec, N. Essaidi, L. Kadoche, M. Borger und H. Launois. *Design and implementation of a combined scanning tunneling and near-field optical microscope*. Ultramicroscopy, **61**, 253–258, (1995).
- [116] R. J. Stephenson und M. E. Welland. *A normal force distance regulation scheme for near-field optical microscopy*. Applied Physics Letters, **68**(12), 1607–1609, (1996).
- [117] J.-K. Leong und C.C. Williams. *Shear force microscopy with capacitance detection for near-field scanning optical microscopy*. Applied Physics Letters, **66**(11), 1432–1434, (1995).
- [118] K. Karrai und R. D. Grober. *Piezoelectric tip-sample distance control for near field optical microscopes*. Applied Physics Letters, **66**(14), 1842–1844, (1995).
- [119] K. Karrai und R. D. Grober. *Piezo-electric tuning fork tip-sample distance control for near field optical microscopes*. Ultramicroscopy, **61**, 197–205, (1995).
- [120] A. Drabenstedt, J. Wrachtrup und C. Von Borczyskowski. *A distance regulation scheme for scanning near-field optical microscopy*. Applied Physics Letters, **68**(24), 3497–3499, (1996).
- [121] A. G. T. Ruiter, K. O. Van Der Werf, J. A. Veerman, M. F. Garcia-Parajo, W. H. J. Rensen und N. F. Van Hulst. *Tuning fork shear-force feedback*. Ultramicroscopy, **71**, 149–157, (1998).
- [122] O. Hollricher, R. Brunner und O. Marti. *Piezoelectrical shear-force distance control in near-field optical microscopy for biological applications*. Ultramicroscopy, **71**, 143–147, (1998).
- [123] M. Naya, R. Micheletto, S. Mononobe, R. U. Maheswari und M. Ohtsu. *Near-field optical imaging of flagellar filaments of salmonella in water with optical feedback control*. Applied Optics, **36**(17), 1681–1683, (1997).
- [124] J. Barenz, O. Hollricher und O. Marti. *An easy-to-use non-optical shear-force distance control for near-field optical microscopes*. Review of Scientific Instruments, **67**(5), 1912–1916, (1996).
- [125] PI-Physik Instrumente, Waldbronn. *Nanopositionierungen*, 2002.

- [126] B. M. Hoeling, A. D. Fernandez, R. C. Haskell und D. C. Petersen. *Phase modulation at 125 kHz in a Michelson interferometer using an inexpensive piezoelectric stack driven at resonance*. Review of Scientific Instruments, **72**(3), 1630–1633, (2001).
- [127] H. Unbehauen. *Regelungstechnik I*. Vieweg, 1994.
- [128] Philips International B.V. *Red Book*. Philips International B.V., System Standards & Licensing, Eindhoven, 1980.
- [129] H. Kämmer. *Die Compact Disc*. Pflaum Verlag, 1987.
- [130] Y. Mitsuoka, K. Nakajima, K. Homma, N. Chiba, H. Muramatsu und T. Ataka. *Polarization properties of light emitted by a bent optical fiber probe and polarization contrast in scanning near-field optical microscopy*. Journal of Applied Physics, **83**(8), 3998–4003, (1998).
- [131] H. J. Eichler, P. Günter und D. W. Pohl. *Laser-induced Dynamic Gratings*. Springer Verlag, 1986.
- [132] D. B. Brayton. *Small particle signal characteristics of a dual-scatter laser velocimeter*. Applied Optics, **13**(10), 2346–2351, (1974).
- [133] A. E. Siegman. *Bragg diffraction of a gaussian beam by a crossed-gaussian volume grating*. Journal of the Optical Society of America, **67**(4), 545–550, (1977).
- [134] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, H. J. Levinstein und K. Nassau. *Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO_3 and LiTaO_3* . Applied Physics Letters, **9**(1), 72–74, (1966).
- [135] D. Langhans, J. Salk und N. Wiese. *Diffraction efficiency and temporal decay of laser-induced gratings in Rhodamine 6G*. Physica, **144C**, 411–417, (1987).
- [136] H. Kogelnik. *Coupled wave theory for thick hologram gratings*. Bell System Technical Journal, **48**, 2909–2947, (1969).
- [137] N. Wiese, H. J. Eichler und J. Salk. *Nonlinear complex susceptibility of cresyl violet solution measured with a dynamic grating method*. IEEE Journal of Quantum Electronics, **25**(3), 403–407, (1989).
- [138] F. Goos und H. Hänchen. *Ein neuer und fundamentaler Versuch zur Totalreflexion*. Annalen der Physik, **6**(1), 333–346, (1947).
- [139] U. Willer. *NIR- und MIR-Evanescenzfeldsensoren -Grundlagen und Anwendungen-*. Dissertation, Technische Universität Clausthal, 2001.
- [140] U. Willer, D. Scheel, I. Kostjucenko, C. Bohling, W. Schade und E. Faber. *Fiber-optic evanescent-field laser sensor for in-situ gas diagnostics*. Spectrochimica Acta A, **58**, 2427–2432, (2002).

- [141] Systektum GmbH, W. Schade, T. Blanke, U. Willer und D. Scheel. *Patentschrift DE 10054415C2. Analysesensor und Verfahren zur spektroskopischen Analyse in optisch dichten Medien*, April 2003.
- [142] M. Born und E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon Press, 1965.
- [143] I. N. Court und F. K. von Willisen. *Frustrated total internal reflection and application of its principle to laser cavity design*. Applied Optics, **3**(6), 719–729, (1964).
- [144] S. Zhu, A. W. Yu, D. Hawley und R. Roy. *Frustrated total internal reflection: A demonstration and review*. American Journal of Physics, **54**(7), 601–606, (1986).
- [145] H. Ito, A. Takamizawa, H. Tanioka, H. Totsuka und M. Ohtsu. *Toward near-field optical manipulation of atoms using a nanometric fiber probe*. International Quantum Electronics Conference, Nice, **QWD38**, 106, (2000).
- [146] A. J. Meixner, M. A. Bopp und G. Tarrach. *Direct measurement of standing evanescent waves with a photon-scanning tunneling microscope*. Applied Optics, **33**(34), 7995–8000, (1994).
- [147] Schott Glas, Mainz. *Filter '99 Version 1.1 D, Katalog Optische Glasfilter*, 1999.
- [148] Jobin Yvon Horiba Group, 3880 Park Ave, Edison New Jersey. *Datasheet: H20 series Monochromator*, 2003.
- [149] Hamamatsu Photonics, Japan. *Manual: Photomultiplier Tube R928*, 2000.
- [150] Canberra-Packard Central Europe GmbH, Schwadorf, Österreich. *Specification Sheet: Model 3002 0...3 kV H.V. Power Supply*, 2000.
- [151] EG&G Ortec, EG&G Instruments GmbH, München. *Operating and Service Manual: Model 9301 Fast Preamplifier*, 2000.
- [152] EG&G Ortec, EG&G Instruments GmbH, München. *Operating and Service Manual: Model 9302 Amplifier Discriminator*, 2000.
- [153] EG&G Ortec, EG&G Instruments GmbH, München. *Operating and Service Manual: Model 9315 Photon Counter*, 2000.
- [154] EG&G Ortec, EG&G Instruments GmbH, München. *Operating and Service Manual: Model 9325 DA-Converter*, 2000.
- [155] H. Kogelnik und C. V. Shank. *Coupled-wave theory of distributed feedback lasers*. Journal of Applied Physics, **43**(5), 2327–2335, (1972).
- [156] Z. Bor. *A novel pumping arrangement for tunable single picosecond pulse generation with a N₂ laser pumped distributed feedback dye laser*. Optics Communications, **29**, 103–108, (1979).

- [157] Z. Bor. *Intrapulse thermally induced wavelength shift in a distributed feedback dye laser*. Applied Physics, **19**, 39–41, (1979).
- [158] Z. Bor. *10 Å continuous pressure tuning of a single-frequency distributed feedback dye laser*. Optics Communications, **29**, 329–330, (1979).
- [159] Z. Bor. *Tunable picosecond pulse generation by a N₂ laser pumped self Q-switched distributed feedback dye laser*. IEEE Journal of Quantum Electronics, **QE-16**(5), 517–524, (1980).
- [160] J. Schaaf. *Distributed Feedback Laser mit Farbstoffen und Titan-Saphir*. Diplomarbeit, Christian-Albrechts-Universität zu Kiel, 1995.
- [161] A. Knaack. *Pikosekunden Laserspektroskopie zum simultanen Nachweis von Minoritätsspezies in atmosphärischen Flammen*. Dissertation, Christian-Albrechts-Universität zu Kiel, 1997.
- [162] A. Offt. *Diagnostische Grundlagen für die quantitative Bestimmung von Teilchendichten in Verbrennungsprozessen mit zeitaufgelöster laserinduzierter Fluoreszenzspektroskopie*. Dissertation, Christian-Albrechts-Universität zu Kiel, 1997.
- [163] I. P. Kaminow und H. P. Weber. *Poly(methylmetacrylat) dye laser with internal diffraction grating resonator*. Applied Physics Letters, **18**(11), 497–499, (1971).
- [164] W. J. Tomilson, I. P. Kaminow, E. A. Chandross, R. L. Fork und W. T. Silfvast. *Photoinduced refractive index increase in Poly(methylmetacrylat) and its applications*. Applied Physics Letters, **16**(12), 486–489, (1970).
- [165] U. Brackmann. *LambdaChrome Laser Dyes*. Lambda Physik AG, 2000.
- [166] R. Wallenstein. Pulsed dye lasers. In M. L. Stitch, Herausgeber, *Laser Handbook Vol. III*. North Holland Publishing Company, 1997.
- [167] F. K. Kneubühl und M. W. Sigrist. *Laser*. Teubner Studienbücher, 1991.
- [168] C. J. Brinker und G. W. Scherer. *Römpp Chemie Lexikon*. Georg Thieme Verlag, 1995.
- [169] T. Voß. *Aufbau und Charakterisierung eines Microchip-laser-gepumpten DFB-Polymer-Lasers*. Diplomarbeit, Technische Universität Clausthal, 2001.
- [170] C. C. Davis. *Lasers and Electro-Optics*. Cambridge University Press, 1996.
- [171] O. Teschke, A. Dienes und J. R. Whinnery. *Theory and operation of high-power cw and long-pulse dye lasers*. IEEE Journal of Quantum Electronics, **QE-12**(7), 383–395, (1976).

- [172] D. Magde, S. T. Gaffney und B. F. Campbell. *Excited singlet absorption in blue laser dyes: measurements by picosecond flash photolysis*. IEEE Journal of Quantum Electronics, **QE-17**(4), 489–495, (1981).
- [173] L. Kastrup und S. W. Hell. *Measurements of Cross Sections of Single Molecules*. Posterpreisträger des InnovationsForum Photonik, Goslar, Mai 2003.
- [174] H. E. Lessing und A. Jena. Continuous picosecond spectroscopy of dyes. In M. L. Stitch, Herausgeber, *Laser Handbook Vol. III*. North Holland Publishing Company, 1997.
- [175] J. R. Lombardi, J. W. Raymond und A. C. Albrecht. *Rotational relaxation in rigid media by polarized photoselection*. Journal of Chemical Physics, **40**(4), 1148–1156, (1964).
- [176] F. K. Kneubühl. *Theories on Distributed Feedback Lasers*. Harwood Academic Publishers, 1993.
- [177] B. H. Soffer und B. B. McFarland. *Continuously tunable, narrow-band organic dye lasers*. Applied Physics Letters, **10**(10), 266–267, (1967).
- [178] J. Falbe und M. Regitz. *Sol Gel Science: The physics and chemistry of sol-gel processing*. Academic Press, 1990.
- [179] G. Hensch. *Ursache der Alterung von porösen Sol-Gel-Antireflexbeschichtungen*. Dissertation, Technische Universität Clausthal, 1999.
- [180] X. I. Zhu und D. Lo. *Sol-gel glass distributed feedback waveguide laser*. Applied Physics Letters, **80**(6), 917–919, (2002).
- [181] A. Steinmann. Titel stand zur Drucklegung noch nicht fest. Diplomarbeit, Technische Universität Clausthal, voraussichtlich Herbst 2003.
- [182] H. Domininghaus. *Die Kunststoffe und ihre Eigenschaften*. Springer Verlag, 1998.
- [183] O. Schwarz. *Kunststoffkunde*. Vogel Verlag, 1997.
- [184] Polysciences Europe GmbH, Eppelheim. *Technical Data sheet 408: Methyl Methacrylate & Butyl Methacrylate Kit*, 2000.
- [185] C. Romano. *Farbstoff-Polymer-Filme als laseraktive Medien für DFB-Laser*. Diplomarbeit, Technische Universität Clausthal, 2002.
- [186] G. A. Reider. *Photonik*. Springer Verlag, 1997.
- [187] I. N. Bronstein und K. A. Semendjajew. *Taschenbuch der Mathematik*. B. G. Teubner Verlag, 1991.

- [188] W. G. Fastie. *A small plane monochromator*. Journal of the Optical Society of America, **42**(9), 641–646, (1952).
- [189] W. Demtröder. *Laserspektroskopie*. Springer-Verlag, 1993.
- [190] LOT-ORIEL, Darmstadt. *Typical Spectra of ORIEL Spectral Calibration Lamps*, 1995.
- [191] EG&G Princeton Applied Research. *Datenblatt: Gated image intensifier model 1435A*, 1996.
- [192] J. Bublit. *Zeitaufgelöste laserinduzierte Fluoreszenzmessungen zur quantitativen Bestimmung aromatischer Kohlenwasserstoffe in mineralölbelasteten Wasserproben*. Dissertation, Christian-Albrechts-Universität zu Kiel, 1996.
- [193] Hamamatsu Photonics, Japan. *Guide to Streak-Cameras*, 2000.
- [194] Optronis. *User Manual: Optronis Optoscope Streak Camera System*, 2000.
- [195] Internet: <http://aesd.larc.nasa.gov/GL/LASER/SPECTRA/data/ndyag.txt>. *Database LASERS - Nd (Neodymium doped crystal) Spectra*, 2003.
- [196] D. Scheel. *Aufbau eines injektionsstabilisierten Diodenlasersystems*. Diplomarbeit, Christian-Albrechts-Universität zu Kiel, 1998.
- [197] T. Blanke. *Differenzfrequenz-Lasersystem für die hochauflösende MIR-Absorptionsspektroskopie*. Dissertation, Technische Universität Clausthal, 2001.
- [198] P. Geiser. *Pikosekunden-MIR-DFG-Lasersystem -Aufbau und Charakterisierung*. Diplomarbeit, Technische Universität Clausthal, 2002.
- [199] P. Geiser, D. Scheel und W. Schade. *Studie zur Realisierung eines kompakten, gepulsten Microchiplasers mit einer Ausgangswellenlänge von 355 nm auf Basis verschiedener Kristalltypen*. Technische Universität Clausthal, 2000.
- [200] IntraAction Corp., Bellwood. *Datasheet: Model AOM series - Acousto-Optic-Modulator/Frequency Shifter*, 2000.
- [201] C. W. Extrand. *An investigation of spin coating of electron resists*. Polymer Engineering and Science, **19**(15), 1117–1121, (1979).
- [202] C. W. Extrand. *Spin coating of very thin polymer films*. Polymer Engineering and Science, **34**(5), 390–394, (1994).
- [203] D. P. Birnie III, B. J. J. Zelinski, S. P. Marvel, S. M. Melpolder und R. Roncone. *Film/substrate/vacuum-chuck interactions during spin coating*. Optical Engineering, **31**, 2012–2020, (1992).

- [204] D. P. Birnie III, B. J. J. Zelinski und D. L. Perry. *Infrared observation of evaporative cooling during spin coating processes*. Optical Engineering, **34**, 1782–1788, (1995).
- [205] Tencor Instruments, Mountain View California. *Datasheet: Tencor P-1 long scan profilometer*, 1998.
- [206] X. l. Zhu, S.-K. Lam und D. Lo. *Distributed-feedback dye-doped solgel silica lasers*. Applied Optics, **39**(18), 3104–3107, (2000).
- [207] M. Maeda, Y. Oki und K. Imamura. *Ultrashort pulse generation from integrated singel-chip dye laser*. IEE Journal of Quantum Electronics, **33**(12), 2146–2149, (1997).
- [208] V. Dumarcher, L. Rocha, C. Denis, C. Fiorini, J.-M. Nunzi, F. Sobel, B. Sahraoui und D. Gindre. *Polymer thin-film distributed feedback tunable lasers*. Journal of Optics A: Pure Applied Optics, **2**, 279–283, (2000).
- [209] *User Manual: UVICON 820 Spectrometer*, 2000.
- [210] S. S. Sarkisov, D. E. Diggs, G. Adamovsky und M. J. Curley. *Single-arm double-order planar waveguide interferometric sensor*. Applied Optics, **40**(3), 349–359, (2001).
- [211] G. Szabo und Z. Bor. *300 femtosecond pulses at 497 nanometer generated by an excimer laser pumped cascade of distributed feedback dye lasers*. Applied Physics B, **47**, 299–302, (1988).
- [212] A. Pohlkötter. Titel stand zur Drucklegung noch nicht fest. Diplomarbeit, Technische Universität Clausthal, voraussichtlich Herbst 2003.
- [213] J. Hukriede, D. Runde und D. Kip. *Fabrication and application of holographic Bragg gratings in lithium niobate channel waveguides*. Journal of Physics D: Applied Physics, **36**, R1–R16, (2003).
- [214] D. W. Phillion, D. J. Kuizenga und A. E. Siegmann. *Subnanosecond relaxation time measurements using a transient induced grating method*. Applied Physics Letters, **27**(2), 85–87, (1997).
- [215] M. Esselborn. Titel stand zur Drucklegung noch nicht fest. Diplomarbeit, Technische Universität Clausthal, voraussichtlich Winter 2003.
- [216] D. M. Bagnall, Y. F. chen, Z. Zhu, T. Yao, S. Koyama, M. Y. Shen und T. Goto. *Optically pumped lasing of ZnO at room temperature*. Applied Physics Letters, **70**(17), 2230–2232, (1997).
- [217] Z. K. Tang, K. L. Wong und P. Yu. *Room temperature ultraviolet laser emission from self-assembled ZnO microcrystallite thin films*. Applied Physics Letters, **72**(25), 3270–3272, (1998).

- [218] M. H. Huang, S. Mao, H. Feick, H. Yan, Y. Wu, H. Kind, E. Weber, R. Russo und P. Yang. *Room-temperature ultraviolet nanowire nanolasers*. Science, **292**(8), 1897–1899, (2001).
- [219] D. Krcho. *Kramers-Kronig relations in fourier transform infrared spectroscopy*. 3rd Biennial Mathematics and Applications Conference, Adelaide, (1998).
- [220] R. W. Ditchburn. *Light Volume 2*. Academic Press, 1976.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

Meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Wolfgang Schade danke ich für die interessante Themenstellung und die engagierte Betreuung sowie für die vertrauensvolle und freundschaftliche Zusammenarbeit. Er hat diese Arbeit durch diverse neue Fragestellungen stets bereichert.

Ulrike Willer und Torsten Blanke danke ich für die nette Aufnahme in die Gruppe und die stets freundliche Zusammenarbeit und gegenseitige Unterstützung auch neben dem Clausthaler Universitätsleben. Ulrike Willer sei an dieser Stelle nochmals besonders für die fruchtbaren physikalischen Diskussionen und Simulationen sowie für die geduldige Vermittlung diverser Tanzschritte und das stete Lächeln bei der Überreichung und der sorgfältigen Korrektur diverser Vorversionen dieser Arbeit in Leitz-Ordnerstärke gedankt. Torsten Blanke danke ich für die vielen interessanten physikalischen Fragestellungen auch während der spannenden Squashspiele („Wie kommst du bloß an diesen Ball?“).

Für die Grundsteinlegung des optischen Nahfeldmikroskops und die weiterführende Zusammenarbeit und Beratung aus der Ferne sowie diverse sportliche Herausforderungen möchte ich mich bei Jan Preußner bedanken.

Meinem Zimmerkollegen Claus Romano danke ich für die ertragreichen Diskussionen nicht nur zum Thema Polymer-DFB-Laser und geeignete MTB-Routen.

Peter Geiser danke ich neben seinem allmorgendlichen „Weckgespräch“ nicht nur zum Thema „geeignetes Langlaufwachs für die heutigen Schneebedingungen“ für das akribische Korrekturlesen dieser Arbeit.

Allen ehemaligen und gegenwärtigen Kolleginnen und Kollegen der Arbeitsgruppe gebührt Dank für das gute Betriebsklima und die gegenseitige Hilfsbereitschaft. Besonders möchte ich mich auch bei den vielen ausländischen Studenten und Mitarbeitern, welche im Rahmen diverser Austauschprojekte die Möglichkeit der Mitarbeit in unserer Gruppe nutzten und nutzen, für die vielen bereichernden Gespräche zur Physik sowie Kultur und Lebensweise bedanken.

Frau Nietzel danke ich für Ihre stete Hilfsbereitschaft und ihre endlose Geduld, welche oft bei meinen telefonischen Bestellungen ohne schriftliche Mitteilung ans Sekretariat auf die Probe gestellt wurde.

Das Elektronik-Team um Herrn Zerries und dort insbesondere Herr Nietzel half immer sehr engagiert, schnell und präzise bei der Lösung aktueller Elektronikprobleme.

Herrn Cyris danke ich für die Augermikrosondenmessungen an den NSOM-Spitzen und für die Beratung bei chemischen Fragen.

Ich möchte mich sehr bei Herrn Wittenberg und seinen Mitarbeitern bedanken: Er und sein Team fertigten immer sehr zuverlässig, präzise und schnell große und kleinste mechanische Komponenten nach vorheriger Durchsicht meiner „technischen Zeichnungen im Colani-Stil“.

Dem gesamten IT-Team danke ich für die Gespräche zu aktueller Hard- und Software und die spannenden Gefechte in der virtuellen Welt.

Neben den vielen freundlichen Kontakten innerhalb des eigenen Instituts möchte ich mich auch für die hilfsbereiten Mitarbeiter anderer TUC-Institute insbesondere bei Herrn Görke für die REM-Aufnahmen der NSOM-Spitzen, bei Herrn Peter für die Einweisung in das Profilometer zur Vermessung der Schichtdicken und bei Gundula Helsch für die Präparation der Sol-Gel-Lösungen bedanken.

Meinem Freund Ulf Thiele danke ich für die vielen fruchtbaren Gespräche und Diskussionen nicht nur zum Thema optische Nahfeldmikroskopie und Spitzenpräparation.

Herrn Dr. Jens Bublitz und Herrn Dipl.-Ing. Erik Ziegler danke ich für ihre stete Hilfsbereitschaft und die tiefen Einblicke ins nun bevorstehende Berufsleben.

Ich möchte auch allen Freunden und Bekannten danken, welche es geschafft haben, mich während der Erstellung dieser Arbeit in den für sie hohen Bergen und dunklen Wäldern des geheimnisvollen Harzes zu besuchen. Viele von ihnen erkannten nach ihrem Besuch den hohen Freizeitwert dieser Region.

Meinen Eltern danke ich für die liebevolle Unterstützung und für die kontinuierliche Förderung während der gesamten Ausbildung und der „vorlesungsfreien Zeit“. Durch diese Unterstützung gelang es mir, viele interessante Bereiche dieses Planeten nicht nur theoretisch sondern auch praktisch zu „erfahren“. Ein spezieller Dank gilt der Lagermöglichkeit diverser im Oberharz nicht einsetzbarer Wassersportartikel.

Für viele Basteleien und ihre häufig sehr schnelle, effektvolle Zerstörung, danke ich meinem Bruder.

Auch meinen Schwiegereltern gebührt Dank für viele interessante, „fruchtbare“ Gespräche nicht nur während des Genusses der besten Kuchen und Torten dieser Erde.

Besonderer Dank gilt meiner langjährigen Freundin und Ehefrau Kathrin, welche mich stets bei der Erstellung dieser Arbeit mit viel Liebe und Verständnis unterstützte. Es ist sehr schön, sein Leben mit einem so liebenswerten Menschen über viele Jahre zu teilen.

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorgelegte Arbeit selbstständig, ohne unerlaubte Hilfe verfasst und die benutzten Hilfsmittel vollständig angegeben habe.

Clausthal-Zellerfeld,

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich noch keine früheren Promotionsversuche unternommen habe.

Clausthal-Zellerfeld,